



Hydrodynamique de l'accumulation des dépôts de paraffines dans les conduites pétrolières

Amine Benallal

► To cite this version:

Amine Benallal. Hydrodynamique de l'accumulation des dépôts de paraffines dans les conduites pétrolières. Mécanique [physics.med-ph]. École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2008. Français. NNT : 2008ENMP1603 . tel-00377593

HAL Id: tel-00377593

<https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-00377593>

Submitted on 22 Apr 2009

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



École Doctorale n°364 : Sciences Fondamentales et Appliquées

N° attribué par la bibliothèque
60848 | | | | | | | | | |

T H E S E

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE PARIS

Spécialité “Mécanique numérique”

présentée et soutenue publiquement par
Amine BENALLAL

le 15 décembre 2008

HYDRODYNAMIQUE DE L'ACCUMULATION DES DÉPÔTS DE PARAFFINES DANS LES CONDUITES PÉTROLIÈRES

Directeur de thèse : Jean-François AGASSANT
Promoteur de thèse: Philippe MAUREL

Jury

Mr Alain LINE	Président
Mr Ian FRIGAARD	Rapporteur
Mr Albert MAGNIN	Rapporteur
Mr Benjamin BROCARD	Examineur
Mr Anthony WACHS	Examineur
Mr Jean-François AGASSANT	Examineur
Mr Philippe MAUREL	Examineur

Résumé

Le problème de dépôt de paraffine dans les puits et les conduites de transport pétrolières monopolise des moyens humains et économiques conséquents. Sa prédiction s'avère donc importante pour optimiser sa gestion. Nous proposons une approche nouvelle pour mieux prédire la formation de ce dépôt: le brut paraffinique se comporte comme un matériau viscoplastique dont les paramètres dépendent de la température et de la teneur en cristaux de paraffine. Ainsi le dépôt résulte d'une combinaison subtile entre les effets thermiques, hydrodynamiques, thermodynamiques, la diffusion de la paraffine et la rhéologie du brut. Des essais expérimentaux ont été menés dans une conduite cylindrique sur la boucle Lyre à l'IFP-Lyon. Les résultats obtenus confortent la pertinence de l'approche proposée. Nous avons conçu également un dispositif expérimental "Couette Cylindrique" simple et économe capable de rendre compte des principaux mécanismes de dépôt. Les premiers résultats montrent que ce dispositif est adapté pour reproduire les dépôts de paraffine et peut fournir certains paramètres essentiels à la simulation numérique tel que le coefficient de diffusion.

Nous avons développé un modèle numérique prenant en compte les phénomènes physiques mis en évidence expérimentalement: écoulement d'un matériau viscoplastique thermodépendant couplé à la diffusion Fickienne de paraffine. Ce modèle est capable de rendre compte qualitativement de la construction progressive du dépôt en conduite mais les temps de calcul sont très importants. Nous avons adapté ce modèle à la géométrie de Couette développée expérimentalement. Les temps de calcul sont alors beaucoup plus raisonnables et leurs résultats sont en accord avec ceux des premières expériences.

Abstract

The wax deposit issue in wells and pipelines is very expensive to oil companies. That is why the prediction of this wax deposit is critical to optimize its management. In this thesis, it is proposed that the deposit could result from flow patterns caused by rheological factors. Indeed, thermodynamic properties create the onset of wax crystals, and diffusion mechanisms result in the displacement and accumulation of wax in a particular region. This results in rheological changes that modify the flow pattern and create an unyielded region near the wall, namely a wax deposit. To highlight this process, experimental tests of wax deposition were performed on the Lyre loop at IFP-Lyon. Results show some insights that confirm our approach. A more simple and efficient experimental facility "Cylindrical Couette" was designed. This tool is able to reproduce the main deposit mechanisms and can supply some critical parameters as diffusion coefficient.

In parallel we develop a numerical model accounting for the main physical phenomena which have been observed experimentally: viscoplastic temperature dependent material coupled with a Fick diffusion equation for wax. This model captures qualitatively the progressive built up of a wax deposit in a pipeline but the computation time is very important. We adapt this numerical model to the simplified Couette geometry which has been experimentally developed. The computation time is more reasonable and the results are in agreement with the preliminary experimental results.

Remerciements

Je tiens à exprimer mes profonds et sincères remerciements à mon promoteur de thèse Mr Philippe MAUREL pour l'aide précieuse qu'il m'a apportée ainsi que son expertise. Son œil critique m'a été indispensable pour structurer mon travail ainsi que la qualité de mon rapport. Ses qualités humaines m'ont marqué à jamais.

Je tiens également à remercier mon directeur de thèse le professeur Jean-François AGASSANT pour ses critiques, ses conseils, ses remarques, ses « schémas » simplifiés et sa disponibilité qui m'ont beaucoup apportés à tous les niveaux.

Un grand merci aux techniciens de R044 qui m'ont aidé dans mes travaux de thèse en particulier Mr Philippe LEMINTER pour son aide concernant la rhéologie et l'unité 433, Mr Guillaume AVRIL et Mr Eric PEURIERE concernant les essais de la boucle LYRE et Mr Jean pierre WILD pour la mise en place de l'unité 433. Quelle chance pour l'IFP de vous avoir.

Je sais également gré aux ingénieurs qui m'ont aidé à tous les niveaux à savoir Anthony WACHS, Guillaume VINAY, Myriam DARBOURET, Philippe PAGNIER, Thierry PALERMO, Patrick GATEAU, Isabelle HENAUT, Yannick PEYSSON, Timothée PERDRIZET, Françoise BRUCY et Véronique HENRIOT.

Fred, Pascal, Denis, Jean Marc, Didier, Francis, Norbert, Christian, Vincent, Yann, Philippe, Geoffrey, Arnaud, Jacqueline, Serge, Thierry, Mickael et Daniel merci pour votre bonne humeur et pour vos débats passionnés mais néanmoins très intéressants.

Je remercie également le personnel et les thésards du CEMEF avec qui j'ai passé un agréable séjour au début de ma thèse. Je remercie plus particulièrement Marie-Françoise GUENEGAN-VIDAL qui m'a rendu les démarches administratives faciles.

Je remercie tous mes amis et ma famille qui m'ont rendu la vie à coté de la thèse agréable (je ne citerai pas de nom afin de n'oublier personne).

Enfin, j'exprime ma gratitude aux membres du jury qui ont accepté d'évaluer cette thèse.

A la mémoire de ma mère : GHARIBA-BENALLAL Fatima

Table des matières

CHAPITRE I: INTRODUCTION GÉNÉRALE.	9
--	----------

CHAPITRE II: SCÉNARII DE LA FORMATION DES DÉPÔTS DE PARAFFINE.	15
--	-----------

II.1 QU'EST-CE QU'UN BRUT PARAFFINIQUE? - QUELQUES CARACTÉRISTIQUES:.....	15
II.2 L'ASPECT PHYSIQUE DE LA PARAFFINE:	15
II.3 L'ÉQUILIBRE THERMODYNAMIQUE DE PHASE SOLIDE/LIQUIDE:	17
II.4 LES MÉCANISMES MIS EN JEU DANS LA FORMATION DU DÉPÔT:	18
II.4.1 LA DIFFUSION MOLÉCULAIRE:	19
II.4.2 LA DIFFUSION BROWNIENNE:	21
II.4.3 LA DISPERSION PAR CISAILLEMENT :	23
II.4.4 LE TAUX D'INCORPORATION DES CRISTAUX DE CIRE DANS LE DÉPÔT :	24
II.4.5 FACTEURS LIMITANT DE LA CROISSANCE DU DÉPÔT :	25
II.4.6 DISCUSSION SUR LES PRÉDICTIONS DES MODÈLES EXISTANTS:.....	26
II.5 LE DÉTOUR PAR LE PROBLÈME DE LA GÉLIFICATION DES BRUTS PARAFFINIQUE LORS DE PHASE D'ARRÊT DE L'ÉCOULEMENT : LE COMPORTEMENT NON NEWTONIEN DES BRUTS PARAFFINIQUES:	29
II.5.1 THERMODÉPENDANCE	29
II.5.2 INFLUENCE DE LA VITESSE DE REFROIDISSEMENT:	30
II.5.3 INFLUENCE DE LA CONTRAINTE DE CISAILLEMENT LORS DU REFROIDISSEMENT :	32
II.5.4 INFLUENCE DU TAUX DE PARAFFINE SOLIDE SUR LE COMPORTEMENT DU BRUT:	33
II.6 NOTRE MODÈLE: UN COUPLAGE DES PHÉNOMÈNES D'ÉCOULEMENT, DE GEL ET DES PHÉNOMÈNES DE DIFFUSION.....	38

CHAPITRE III: EXPÉRIENCE DE FORMATION DE DÉPÔT DE PARAFFINE DANS UNE BOUCLE D'ESSAI.....	43
---	-----------

III.1 DESCRIPTION GÉNÉRALE DE LA BOUCLE LYRE	43
III.2 INSTRUMENTATION DE LA BOUCLE LYRE:	44
III.3 CARACTÉRISATION THERMODYNAMIQUE ET RHÉOLOGIQUE DU BRUT DE L'ESSAI.	46
III.3.1 ANALYSE DU BRUT HK PAR LA CALORIMÉTRIE DIFFÉRENTIELLE À BALAYAGE (DSC) DU BRUT.	47
III.3.2 CARACTÉRISATION RHÉOLOGIQUE DU BRUT.	48
III.4 MODE OPÉRATOIRE DES ESSAIS DE FORMATION DES DÉPÔTS DE PARAFFINE DANS LA BOUCLE LYRE.	49
III.5 DÉTERMINATION DE L'ÉVOLUTION TEMPORELLE DE L'ÉPAISSEUR DU DÉPÔT EN UTILISANT LA PERTE DE CHARGE:	51
III.6 RÉSULTATS ET DISCUSSIONS.	53
III.6.1 OBSERVATION ET PESÉE DES DÉPÔTS DE PARAFFINES RÉCUPÉRÉS DANS LA MANCHETTE À PARAFFINE.	53
III.6.2 ÉVOLUTION TEMPORELLE DU DÉPÔT DE PARAFFINE.	58
III.6.3 ANALYSE PAR DSC DES DÉPÔTS DE PARAFFINE RÉCUPÉRÉS.	62
III.6.4 ANALYSE RHÉOLOGIQUE DU DÉPÔT DE PARAFFINE RÉCUPÉRÉ LORS DU TEST "TEST_72H_283K".....	63
III.7 CONCLUSIONS	64

CHAPITRE IV: MODÈLE THERMOMÉCANIQUE DES DÉPÔTS DE PARAFFINES ET RÉSOLUTION NUMÉRIQUE. 69

IV.1	INTRODUCTION.....	69
IV.2	ÉQUATIONS GOUVERNANTES.....	69
IV.2.1	CONSERVATION DE LA MASSE.....	69
IV.2.2	CONSERVATION DE LA QUANTITÉ DE MOUVEMENT.....	70
IV.2.3	CONSERVATION DE L'ÉNERGIE.....	70
IV.2.4	ÉQUATION BILAN ET DE TRANSPORT DES NORMALES PARAFFINES DANS LE BRUT.	72
IV.2.5	LOI DE COMPORTEMENT.....	74
IV.2.6	SYSTÈME D'ÉQUATIONS DU PROBLÈME.....	75
IV.2.7	DOMAINE DE RÉSOLUTION ET LES CONDITIONS AUX LIMITES DU DOMAINE D'ÉCOULEMENT.	76
IV.3	FORMULATION MATHÉMATIQUE	77
IV.3.1	RÉSOLUTION DU PROBLÈME VITESSE-PRESSION PAR LA MÉTHODE DU LAGRANGIEN AUGMENTÉ.....	78
IV.3.2	ÉTABLISSEMENT DE L'ALGORITHME DE RÉSOLUTION DES ÉQUATIONS DE LA DYNAMIQUE (UZAWA) :	82
IV.3.3	RÉSOLUTION DE L'ÉQUATION DE DIFFUSION AVEC UN TERME PUIITS PAR LA MÉTHODE DE MARCHUK-YANENKO (MY)	84
IV.3.4	ALGORITHME GÉNÉRAL DE RÉSOLUTION.....	85
IV.4	DISCRÉTISATION DES ÉQUATIONS D'ÉQUILIBRE PAR LA MÉTHODE DES VOLUMES FINIS ET RÉSOLUTION NUMÉRIQUE:	87
IV.5	ÉTUDE DE L'ÉCOULEMENT D'UN FLUIDE VISCOPLASTIQUE DONT LES PARAMÈTRES DÉPENDENT DE LA TEMPÉRATURE ET DES CRISTAUX DE PARAFFINE.....	91
IV.6	CONCLUSION:	95

CHAPITRE V: DÉTERMINATION DES PARAMÈTRES THERMODYNAMIQUE ET RHÉOLOGIQUE DU BRUT PARAFFINIQUE..... 97

V.1	INTRODUCTION	97
V.2	MÉTHODOLOGIE DE CARACTÉRISATION DU BRUT	98
V.2.1	PRÉPARATION DES ÉCHANTILLONS:	98
V.2.2	ANALYSE THERMODYNAMIQUE PAR DSC DES ÉCHANTILLONS.	100
V.2.3	PROTOCOLE D'ESSAI POUR LA MESURE RHÉOLOGIQUE.	104
V.3	RÉSULTATS ET DISCUSSIONS	107
V.3.1	ÉVOLUTION DE LA FRACTION CRISTALLISÉE EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE ET DE L'ENRICHISSEMENT.	107
V.3.2	ÉVOLUTION DE LA VISCOSITÉ APPARENTE EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE.....	112
V.3.3	ÉVOLUTION DE LA CONTRAINTE SEUIL EN FONCTION DE LA FRACTION DE PARAFFINE CRISTALLISÉE ET DE LA TEMPÉRATURE.....	116
V.3.4	ÉVOLUTION DE LA CONSISTANCE EN FONCTION DE LA FRACTION CRISTALLISÉE ET DE LA TEMPÉRATURE.	119
V.4	CONCLUSION	121

CHAPITRE VI: UNE EXPÉRIENCE MODÈLE PERMETTANT DE RECRÉER LES DÉPÔTS DE PARAFFINE

VI.1	ÉTUDE PRÉLIMINAIRE: INSTABILITÉS DE "TAYLOR COUETTE":	126
VI.2	DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL.....	130
VI.3	RÉSULTATS	134
VI.3.1	ESSAIS RÉALISÉS.	134

VI.3.2	PROTOCOLE OPÉRATOIRE RETENU POUR LES ESSAIS DE FORMATION DES DÉPÔTS DE PARAFFINE DANS LA GÉOMÉTRIE "COUETTE CYLINDRIQUE"	136
VI.3.3	RÉSULTATS ET DISCUSSIONS	137
VI.3.4	CONCLUSION	149
VI.4	ANALYSE COMPLÉMENTAIRE À L'AIDE DU MODÈLE NUMÉRIQUE DE "COUETTE CYLINDRIQUE" MONODIMENSIONNEL.	150
VI.4.1	LE MODÈLE.....	150
VI.4.2	CAS DE BASE: ÉCOULEMENT D'UN FLUIDE DE BINGHAM DANS UNE GÉOMÉTRIE "COUETTE CYLINDRIQUE" AVEC UN MÉCANISME D'ENRICHISSEMENT :.....	153
VI.4.3	ÉTUDE PARAMÉTRIQUE:	159
VI.4.4	CONFRONTATIONS DES RÉSULTATS NUMÉRIQUES AVEC L'EXPÉRIENCE:	169
VI.5	CONCLUSION.....	173
CHAPITRE VII:	CONCLUSION GENERALE.....	175
BIBLIOGRAPHIE	179

Liste des figures:

Fig- I-1:Schéma simplifié de l'exploitation et le transport d'un pétrole brut.	10
Fig- II-1:Cristaux de paraffines. Image tirée de l'article Maurcio et al.2003.	16
Fig- II-2: l'effet de la vitesse de refroidissement sur la taille et le nombre de cristaux de paraffines (en haut 1.8°F/min, en bas 10.8°F/min).....	17
Fig- II-3:Représentation schématique du réseau poreux constituant le dépôt de paraffines d'après Burger et al. 1981	20
Fig- II-4:Concentration des paraffines précipitées dans la conduite Burger et al. 1981.....	22
Fig- II-5:Exemple de comparaison d'une épaisseur d'un dépôt obtenue avec un modèle basé sur la diffusion moléculaire et de l'épaisseur obtenue expérimentalement tirée de Venkatesen et al. 2007.	27
Fig- II-6:Schéma de la distribution des contraintes de cisaillement dans la conduite et de la vitesse d'écoulement. a) cas isotherme, b) cas non isotherme.	28
Fig- II-7:Comportements rhéologiques d'un brut Nord Africain pour différentes températures, d'après Barry, 1971.	29
Fig- II-8: La contrainte seuil en fonction de la vitesse de refroidissement. Le refroidissement est statique (d'après Venkatesean et al.2005).....	31
Fig- II-9:La contrainte seuil en fonction de la vitesse de refroidissement. Le refroidissement se fait sous une contrainte de 5Pa (tirée de Venkatesean et al.2005).	32
Fig- II-10:Contrainte seuil vs contrainte appliquée lors du refroidissement d'après Venkatesean et al.2005.	32
Fig- II-11 l'évolution de la viscosité apparente en fonction de la concentration des cristaux de paraffines (tirée de Li et al.2003).	34
Fig- II-12: Schéma de la concentration effective et de la concentration nette des cristaux de paraffines.	34
Fig- II-13: Comparaison de la viscosité mesurée avec celle prédite pour 33 bruts paraffiniques tirée de Li et al.2003.....	36
Fig- II-14:Variation de la contrainte seuil en fonction de la quantité de paraffines solidifiées (Venkatesan et al,2005)	36
Fig- II-15: Courbe d'écoulement pour le brut d'Umbaraka à 37°C d'après El-Gamal et al.1997	37
Fig- II-16: Schéma de principe de la nouvelle approche pour la formation du dépôt de paraffine.	40
Fig- III-1:Principe de la mesure de la perte de charge dans la manchette à paraffine.....	45
Fig- III-2:Bouchon dans le piquage du capteur pour la mesure de la perte de charge.	46
Fig- III-3: Évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines du brut HK en % masse en fonction de la température.	47
Fig- III-4:Protocole de mesure de la viscosité apparente du brut HK en fonction de la température. ..	48
Fig- III-5:Évolution de logarithme de la viscosité du brut HK en fonction de l'inverse de la température.	49
Fig- III-6:Dépôt de paraffine formé au bout de 4 heures d'écoulement dans la manchette à paraffine durant le test-24h-283K.	53
Fig- III-7: Dépôts de paraffine obtenus: à gauche au bout de 24 heures à une température de 275 K , à droite au bout de 24 heures à une température de 283 K.....	55

Fig- III-8: Dépôts de paraffine obtenus: à gauche au bout de 72 heures à une température de 275 K , à droite au bout de 72 heures à une température de 283 K.....	56
Fig- III-9:Récupération du dépôt obtenu à gauche :au bout de 24 heures à une température de 283 K , à droite : au bout de 72 heures à une température de 283 K et en bas : au bout de 72 h à une température de 275 K.	57
Fig- III-10:Évolution temporelle de la valeur moyenne des pertes de charge linéiques mesurées par PDT5 et PDT6 pour le test "test-72h-275K" sur 24 heures.....	60
Fig- III-11: Influence du gradient de température sur l'épaisseur du dépôt.....	60
Fig- III-12:Évolution temporelle de la température moyenne du brut à la sortie de la manchette et de la température moyenne de l'eau glycolée à la sortie de l'échangeur pour le test-72h-275K.	61
Fig- III-13:Fraction de cristaux de paraffine dans les dépôts obtenus lors des tests test_72h_275K en bleu et test_24h_283K en rose. En rouge , c'est les cristaux de paraffine présents dans le brut HK.	63
Fig- III-14:Courbes d'écoulement du brut HK et de l'échantillon "40%Dépôt-60%HK" à 283K.....	64
Fig- III-15:Schéma de principe de la boucle LYRE avec les différentes zones.....	66
Fig- III-16:(a) Schéma de principe de la manchette paraffine, (b) photo de la manchette paraffine, (c) et (d) positions des capteurs de température dans la section démontable et (e) cellule "témoin".	67
Fig- IV-1: Bilan de matière des normales paraffines dissoutes.....	72
Fig- IV-2:Géométrie et conditions aux limites du domaine d'écoulement.	76
Fig- IV-3:Disposition décalée des inconnues du problème sur le maillage.	87
Fig- IV-4:Volume de contrôle Ω_{C_i}	88
Fig- IV-5:Évolution de l'épaisseur dépôt de paraffine dans la conduite en fonction du temps.	92
Fig- IV-6:Évolution de la vitesse axiale à différentes sections à l'instant t=70 heures	94
Fig- IV-7:Évolution de la pression le long de la conduite à différents instants.....	94
Fig- V-1: Schéma représentant la nature de la couche fluide près de la paroi à différents instants.	98
Fig- V-2:Mode opératoire pour la préparation de l'échantillon enrichi en dépôt de paraffine.	100
Fig- V-3:Courbes obtenues par DSC pour le brut HK.	102
Fig- V-4: Évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines de "EchHK1" en % masse en fonction de la température.	103
Fig- V-5: Schéma de principe de la géométrie utilisée pour la mesure rhéologique.....	104
Fig- V-6: Protocole d'essai pour obtenir une courbe d'écoulement avec un refroidissement dynamique.	105
Fig- V-7: Exemple de viscosité apparente fonction de la température obtenu durant la phase II du protocole.....	106
Fig- V-8: Exemple de courbe d'écoulement obtenu durant la phase IV du protocole.	106
Fig- V-9: Reproductibilité de l'évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines en fonction de la température pour l'échantillon EchHK2.....	109
Fig- V-10: Évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines en fonction de la température pour tous les échantillons.	109
Fig- V-11: Évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines en fonction de l'enrichissement pour différentes températures	110
Fig- V-12: Évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines en fonction de la température pour un enrichissement nul.....	111
Fig- V-13: Évolution du coefficient directeur de l'équation en fonction de la température.	111
Fig- V-14: Évolution de la viscosité apparente pour les quatre échantillons.	115
Fig- V-15: Reproductibilité de la viscosité apparente pour l'échantillon EchHK4.	115
Fig- V-16: Courbes d'écoulement des quatre échantillons à 275 K.....	117

Fig- V-17: Courbes d'écoulement des quatre échantillons à 283K.....	117
Fig- V-18: Évolution de la contrainte seuil vs de la quantité de cristaux cristallisée à 283 K et à 275 K.	118
Fig- V-19: Évolution du coefficient $A(\Theta)$ en fonction de la température.	119
Fig- V-20: Évolution de la viscosité plastique en fonction de la quantité de cristaux cristallisée à 283 K.	119
Fig- V-21: Évolution de la viscosité plastique en fonction de la quantité de cristaux cristallisée à 275 K.	120
Fig- VI-1: Schéma de principe d'une boucle de laboratoire.	124
Fig- VI-2: Schéma de principe de l'appareil "Coldfinger" tiré de Jennings et al. 2005.....	125
Fig- VI-3: Schéma de principe de l'appareil couette cylindrique tiré de Zougari et al. 2006.....	125
Fig- VI-4: visualisations des instabilités successives de l'écoulement entre cylindres coaxiaux. A gauche : instabilité primaire en "rouleaux". A droite : rouleaux sinusoïdaux. Photos : Burkhalter et Koschmieder.	127
Fig- VI-5: Diagramme des états observés dans un montage de couette cylindrique en co et en contra rotation. R_o et R_i sont respectivement les nombres de Reynolds liés à la rotation du cylindre extérieur et du cylindre intérieur	129
Fig- VI-6: Vue globale de l'unité 433.....	130
Fig- VI-7: Vue schématique des principales parties de l'unité T433.....	131
Fig- VI-8: Cellule du dépôt	132
Fig- VI-9: Photos des deux systèmes de pesée.....	133
Fig- VI-10: Système de chargement /déchargement des fluides.	133
Fig- VI-11: Comparaison de l'évolution de l'épaisseur du dépôt pour les tests "Test-1" et "Test-1- bis".....	139
Fig- VI-12: Exemples de dépôts de paraffine. À gauche un dépôt obtenu à la première heure et, à droite, obtenu après une dizaine d'heures.....	143
Fig- VI-13: Évolution temporelle de l'épaisseur du dépôt pour le test "Test-1-bis"	144
Fig- VI-14: Évolution temporelle de l'épaisseur du dépôt pour le test "Test-2".....	146
Fig- VI-15: Courbe maîtresse de l'évolution temporelle de l'épaisseur du dépôt pour les tests "Test-1- bis" et "Test-2".	147
Fig- VI-16: Courbes d'écoulement des dépôts de paraffine récupérés lors du test "Test-1-bis" au bout de 0.5h, 4h, 9h et 15h à 279K.	149
Fig- VI-17: Géométrie de CC et conditions aux limites.....	152
Fig- VI-18: Évolution de la température dans l'entrefer à différents instants.....	154
Fig- VI-19: Évolution de la concentration de la paraffine dissoute dans l'entrefer à différents instants.	155
Fig- VI-20: Évolution de la concentration de la paraffine cristallisée dans l'entrefer à différents instants.....	156
Fig- VI-21: Évolution de la vitesse angulaire dans l'entrefer à différents instants.	157
Fig- VI-22: Évolution temporelle de l'épaisseur du dépôt dans l'entrefer.	158
Fig- VI-23: Évolution de la contrainte seuil dans l'entrefer à différents instants.	158
Fig- VI-24: Comparaison de l'épaisseur du dépôt avec l'isotherme de cristallisation commençante.	159
Fig- VI-25: Évolution de l'épaisseur du dépôt de paraffine dans l'entrefer pour différentes vitesses angulaires.	160
Fig- VI-26: Corrélations de l'évolution temporelle du dépôt de paraffine dans l'entrefer	161
Fig- VI-27: Évolution temporelle du dépôt de paraffine dans l'entrefer pour différentes température de paroi du cylindre extérieur	163
Fig- VI-28: L'influence du coefficient de diffusion sur l'évolution de l'épaisseur du dépôt.....	165

Fig.- VI-29:l'évolution des cristaux de paraffine dans l'entrefer pour les différentes simulations.	166
Fig.- VI-30:Relation entre le temps caractéristique et le coefficient de diffusion.....	166
Fig.- VI-31: L'influence de la contrainte seuil sur l'évolution de l'épaisseur du dépôt.....	167
Fig.- VI-32:Comparaison entre l'évolution de l'épaisseur du dépôt expérimentale et numérique.....	170
Fig.- VI-33:Comparaison entre l'évolution de l'épaisseur du dépôt expérimentale et numérique avec une tension seuil ajustée.	171
Fig.- VI-34:Comparaison entre l'évolution de l'épaisseur du dépôt expérimentale (test-1-bis) et numérique avec une tension seuil ajustée.....	172
Fig.- VII-1:Exemple de courbe d'écoulement montrant l'effet du gaz dissout dans un brut paraffinique tiré une note technique interne IFP de Isabelle Hénaut.	178
Figure 1: Ecoulement newtonien isotherme stationnaire. En rose, la vitesse de rotation simulée et en bleue la vitesse de rotation analytique. Le rayon du cylindre intérieur, $a=0.025$ m et celui du cylindre extérieur, $b=0.03$ m et $\Omega_e=53$ rad/s.	183
Figure 2: Evolution de la température dans l'entrefer . En rose la température analytique et en bleue la température simulée. $\Theta_a=303$ K, $\Theta_b=296$ K.	184
Figure 3: Résolution graphique de l'équation 3-6. Graphiquement $R_y=0.0333$ m.....	186
Figure 4: Ecoulement d'un fluide de Bingham avec, $\tau_y=100$ Pa, $\mu=1$ Pa s et $\Omega_{in}=10$ rad/s. Une zone morte apparait à $R_y=0.033$ m. En blue la solution analytique et en rouge la solution numérique.	187

CHAPITRE I: INTRODUCTION GÉNÉRALE.

L'orientation de l'industrie pétrolière vers la prospection de nouveaux gisements pétroliers (Offshore, offshore ultra-profond, bruts lourds, gisement très enfouis) s'avère nécessaire pour répondre aux besoins énergétiques croissants de l'économie mondiale. Un gisement pétrolier produit un mélange d'hydrocarbures lourds, moyens et légers sous forme liquide et gazeuse auxquels peuvent s'ajouter des constituants gazeux non hydrocarbures (tels que l'azote, H_2S), de l'eau plus au moins salée et éventuellement des solides. Cet effluent est transporté vers des stations de traitements par conduite afin de séparer les différentes phases: eau, gaz et pétrole brut. Le pétrole brut est ensuite transporté par pipeline vers un port d'exportation ou une zone de stockage ou directement à la raffinerie (Cf.Fig-I-1). Le pipeline est une succession de tubes soudés de diamètre pouvant aller de 20 cm à 120 cm et dont la longueur peut atteindre plusieurs milliers de kilomètre. Son débit est fonction de ses caractéristiques techniques, du nombre et de la puissance des stations de pompage situées tout au long de la conduite et de la qualité du brut transporté. Il existe autant de qualités de pétrole brut qu'il y a de gisements dans le monde puisque la qualité du brut dépend de son histoire géologique. Néanmoins, le pétrole est classifié suivant ses composants majoritaires et la mesure de sa viscosité par la gravité API. Ainsi un pétrole est léger si le degré API est supérieur à 31.1, moyen s'il est compris entre 22.3 et 31.1, lourd s'il est compris entre 10 et 22.3 et extra lourd s'il est inférieur à 10. Les bruts paraffiniques, environ 20% de la production mondiale, sont des huiles légères ou moyennes (Cf. tableau I-1) qui contiennent des normales paraffines (n-paraffines), des alcanes à chaînes linéaires, et des iso-paraffines, des alcanes avec des ramifications. Prises individuellement, les normales paraffines sont, dans des conditions ambiantes, à l'état gazeux, quand la chaîne d'atomes de carbone contient 4 atomes au plus (C_1 à C_4); elles sont à l'état liquide de C_5 à C_{16} et à l'état solide au delà. Ce dernier point est important car, même si la présence des autres hydrocarbures et d'impuretés retarde leurs solidifications, les normales paraffines sont les principales responsables des problèmes de tenue au froid dans les conduites. Il existe deux températures caractéristiques de ces bruts. La température de cristallisation commençante appelée aussi point de trouble Θ_{cc} (WAT, Wax Appearance

Temperature) est la température à laquelle les premiers cristaux de paraffines apparaissent. La température de gel (PP: Pour Point) est la limite à laquelle le brut passe de l'état fluide à un état gel solide sous certaines conditions. Pour se fixer les idées, les ordres de grandeurs de ces deux températures sont présentés dans le tableau I-1 pour différents pétroles bruts.

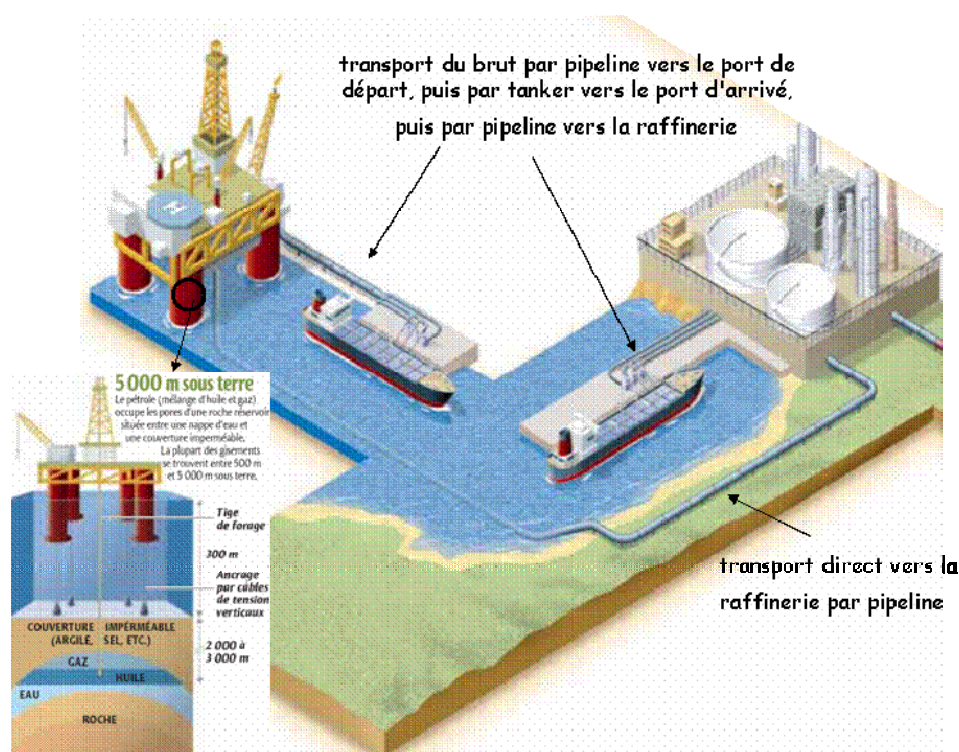


Fig- I-1:Schéma simplifié de l'exploitation et le transport d'un pétrole brut.

C'est au cours du transport de ces bruts par pipeline que des problèmes peuvent apparaître. Ils sont de deux types: le premier est le passage à l'état gel du brut en phase d'arrêt à cause de la température de l'environnement dans lequel le pipeline est soumis si elle est inférieure à PP. Lors du redémarrage, il se pourrait que la pression disponible dans la conduite ne soit pas suffisante pour casser le gel formé. Le second problème concerne l'apparition de dépôts de paraffine lors de l'écoulement lorsque la température de l'environnement où le brut est transporté est inférieure à la Θ_{CC} . Ces dépôts engendrent l'obstruction partielle ou totale des conduites, induisant ainsi un ralentissement voire un arrêt de la production. La méthode d'entretien de base consiste à envoyer des racleurs dans la conduite pour chasser ces dépôts. Pour cela, on équipe chaque extrémité de la conduite d'une gare de racleurs, en amont pour introduire le racleur dans la conduite, en aval pour ressortir ce racleur, le racleur s'étant déplacé sous la poussée de l'effluent produit. Le rythme de passage des racleurs est très

variable d'un champ à l'autre en fonction de l'importance des dépôts à savoir de plusieurs fois par jour à une fois par mois. La compagnie Lasmo (UK) a abandonné en 1994 une plateforme de 100 millions de dollars à cause de ce phénomène récurrent, qui a rendu l'exploitation de ce champ non rentable. Des produits chimiques type dispersants, l'isolation thermique des conduites ou encore le chauffage électrique des conduites, sont également utilisés pour y remédier. Le pétrole brut extrait de l'ouest du Kazakhstan est transporté par pipeline bien isolé sur 1400 km jusqu' aux raffineries de Samara en Russie avec des stations de chauffage tout les 100 km.

Le dimensionnement des pipelines ainsi que les dépenses engendrées pour palier aux problèmes des dépôts de paraffine pourraient être optimisés à l'aide d'un outil numérique capable de "prédire", le plus précisément possible, la quantité de dépôt formé, son vieillissement, le lieu de sa formation ainsi que son évolution au cours du temps. C'est pourquoi des travaux sont menés afin d'améliorer la connaissance de ce phénomène. Ces travaux ne sont pas nouveaux; plusieurs publications ont présenté des modèles de prédiction et les mécanismes identifiés responsables de la croissance du dépôt dans ces articles sont largement débattus. Malheureusement, ces prédictions ont tendance à surestimer la quantité de paraffines solidifiées. Si le caractère non newtonien de ce type de brut est souvent utilisé dans le problème de la gestion des transitoires (arrêt et remise en écoulement), il n'est en revanche que très peu associé, à notre connaissance, à la problématique du dépôt. C'est l'idée que nous proposons de développer dans cette thèse.

Cette thèse est constituée de six chapitres. Nous détaillons dans le chapitre II, les travaux de référence effectués ces trente dernières années sur la compréhension de la phénoménologie de la formation du dépôt. Dans un premier temps nous nous sommes intéressés brièvement à décrire quelques caractéristiques d'un brut paraffinique et préciser quelques définitions. Le second paragraphe est consacré à la mise en évidence des mécanismes éventuellement responsables de la formation du dépôt de paraffines en conduite tels que proposés dans la littérature. Nous faisons ensuite un détour par l'autre problème lié au transport d'un brut paraffinique: la gélification lors des phases d'arrêt de l'écoulement. Nous verrons comment ce problème est abordé par des considérations rhéologiques. Nous concluons cette revue bibliographique par la description de l'approche que nous proposons, issue des précédents paragraphes, pour expliquer et modéliser la construction d'un dépôt de paraffine en conduite.

Une campagne d'essai dans une boucle réduite à l'échelle semi industrielle appelée LYRE est présentée dans le chapitre III. Nous avons testé un brut paraffinique nommé HK à deux gradients de températures différents. Les objectifs recherchés par cette campagne d'essai sont d'identifier les principales caractéristiques de la construction des dépôts de paraffine qui peuvent confirmer ou infirmer la pertinence de l'approche proposée dans le chapitre II.

La formulation mathématique de la nouvelle approche proposée est écrite dans le chapitre IV. Dans un premier temps, les équations qui régissent l'écoulement d'un fluide viscoplastique associé à un enrichissement local en particules paraffiniques sont décrites. Nous nous intéressons à la résolution numérique de ces équations. Nous utilisons le code Starwacs2D développé par G. Vinay, 2005 comme structure de base et nous l'adaptions à notre problématique des dépôts de paraffine. Nous portons un intérêt particulier à l'implémentation de la loi de comportement du brut et à la prise en compte du mécanisme d'enrichissement grâce à une équation de Fick. Ensuite, nous présentons succinctement les méthodes numériques et les algorithmes implémentés dans ce code, nous précisons les modifications apportées au code StarWaCS2D pour traiter la problématique des dépôts de paraffine en conduite.

L'utilisation du code "StarWaCS2D" modifié pour prédire l'évolution de l'épaisseur du dépôt de paraffine en fonction du temps dans une conduite axisymétrique nécessite la détermination de certains paramètres du brut et en particulier la contrainte seuil, τ_0 , la viscosité plastique μ , la quantité de cristaux de paraffine C_s et la température de cristallisation commençante Θ_{cc} . Pour ce faire, nous proposons dans le chapitre V une analyse thermodynamique et rhéologique du brut HK, déjà utilisé dans la campagne d'essai proposée dans le chapitre III, afin de déterminer ses paramètres. Nous détaillons les procédés expérimentaux pour les déterminer. Puis nous tentons de trouver des corrélations pour ces trois paramètres.

Le chapitre VI est dédié au dispositif expérimental de laboratoire "Couette Cylindrique" conçu au cours de la thèse et permettant de recréer des dépôts de paraffine dans des conditions aussi réalistes que possible. Une étude préliminaire est menée afin de nous affranchir des phénomènes supplémentaires, qui n'existent pas dans des conditions de conduite, susceptibles d'influencer la création des dépôts. Ensuite une description précise du dispositif est proposée. Puis, nous avons mené une campagne d'essai avec le brut HK pour étudier l'évolution du dépôt de paraffine au cours de temps pour deux gradients de températures différents. Nous détaillons les résultats obtenus. Dans ce chapitre, une analyse numérique complémentaire a

été effectuée afin d'aider à l'interprétation des résultats. En effet, un code de calcul numérique "Couette Cylindrique" monodimensionnel se basant sur l'approche phénoménologique proposée dans cette thèse a été développé. Nous avons dans un premier temps proposé une étude numérique d'un cas d'étude type afin de nous assurer qu'il y a bien création d'un dépôt de paraffine. Puis nous avons effectué une étude paramétrique des différents paramètres d'entrée du code de calcul afin de mesurer leurs influences sur l'évolution du dépôt de paraffine. Puis nous avons simulé numériquement l'écoulement du brut HK dans les mêmes conditions que les essais expérimentaux. Une comparaison des résultats numériques avec l'expérience est proposée. Finalement une méthodologie pour obtenir le coefficient de diffusion, D_m est proposée.

Nom du Brut	localisation	°API	$\Theta_{CC} (^{\circ}C)$	$PP(^{\circ}C)$	Réf
B o n g a	Offshore Nigeria (1000m)	29-33	46	-	Schoppa et al.2007
C o u l o m b	Offshore du Golf de Mexique (2286m)	35	34-36	-	Manfield et al.2007
Cliff Head	Offshore de Perth en Australie	33	55	33-36	Daniel et al.2008
CaNguVang	Offshore du Vietnam	-	52-66	32	Grove et al.2008
W a s a t c h	Onshore Altamont (E.U)	-	72	49	Matlach et al.1983
D a q i n g	C h i n e	-	43	32	Ding et al. 2006
G a n n e t	Offshore du Mer du nord (UK)	41	35.5	-	Craddock et al. ,2007

Tableau I-1: Exemples de température de cristallisation commençante et de température de gel de certains bruts tirés de la littérature.

CHAPITRE II: SCÉNARII DE LA FORMATION DES DÉPÔTS DE PARAFFINE.

II.1 Qu'est-ce qu'un brut paraffinique? - quelques caractéristiques:

La dénomination pétrole brut recouvre une grande variété et diversité d'hydrocarbures contenant une infinité de composés à base de carbone. Parmi ces composés, les paraffines (wax) sont des alcanes peu ramifiés. Parmi ces alcanes, on distingue les normales et les iso paraffines dont les premières se différencient des secondes par le fait que la chaîne carbonée est linéaire. Ce sont ces n-paraffines qui vont plus particulièrement nous intéresser puisque, sous certaines conditions thermodynamiques que l'on va voir, elles vont perdre leur solubilité au sein du brut ce qui va avoir pour conséquence un changement de leur "état" physique au sein du fluide. Lorsque ce changement d'état vient "perturber" ou poser des problèmes au cours de la production ou du transport du pétrole, donc dans les conditions d'exploitation, on dit d'un pétrole contenant ces n-paraffines qu'il est paraffinique. Les problèmes de production évoqués sont la création d'un dépôt de paraffine à la paroi, le changement de comportement du fluide en écoulement ou bien encore la prise en gel lors de la phase d'arrêt.

II.2 L'aspect physique de la paraffine:

La paraffine reste soluble dans le brut sous certaines conditions d'équilibre. Dès que cet équilibre est perturbé par le changement de certains paramètres tels que la température et la pression, les cristaux de paraffines peuvent apparaître. La solubilité des alcanes décroît sensiblement avec la température. Il existe deux températures caractéristiques des bruts paraffiniques. La température de cristallisation commençante, point de trouble, Θ_{cc} (WAT,

Wax Appearance Temperature) est la température à laquelle les premiers cristaux de paraffines apparaissent. La température de gel, point d'écoulement (Pour Point) est la limite pour laquelle le brut passe de l'état fluide à un état gel solide sous certaines conditions. Les valeurs de ces températures sont relativement compliquées à déterminer expérimentalement. En effet leurs déterminations dépendent étroitement de la procédure utilisée. Pour se fixer les idées, ces températures peuvent être de l'ordre de quelques dizaines de degrés Celsius.

Les constatations expérimentales montrent que le taux de refroidissement joue beaucoup sur ces valeurs. Elles décroissent avec la vitesse de refroidissement d'après Won,1986.

Lorsque le brut contenant des paraffines lourdes est refroidi très lentement et sous certaines conditions, les cristaux formés ressemblent à des aiguilles orthorhombiques ou à des plaques. L'interconnexion entre molécules pour ce type de cristaux est plutôt bonne. Cependant la présence d'impuretés dans le brut et son refroidissement rapide ont pour conséquence une mauvaise cristallisation des paraffines. Ainsi, en réalité les paraffines formées sont un mélange de cristaux hexagonaux et orthorhombiques (Cf.Fig.II-1) Mauricio et al.2003. Dans ce cas, le degré d'interconnexion du réseau 3D formé par ces cristaux est réduit.

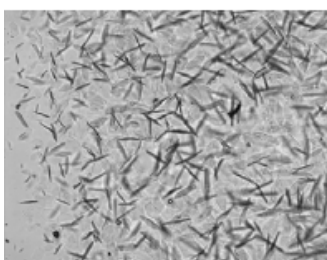


Fig- II-1:Cristaux de paraffines. Image tirée de l'article Mauricio et al.2003.

La figure II-2, tirée de l'article de Venkastesan et al.2005, montre clairement l'influence de la vitesse de refroidissement sur la formation des cristaux de paraffines. Les cristaux formés à vitesse de refroidissement lente sont plus grands et moins nombreux que ceux formés à vitesse de refroidissement rapide. La quantité finale de paraffines formées, une fois l'équilibre thermique retrouvé, est la même pour les deux cas.

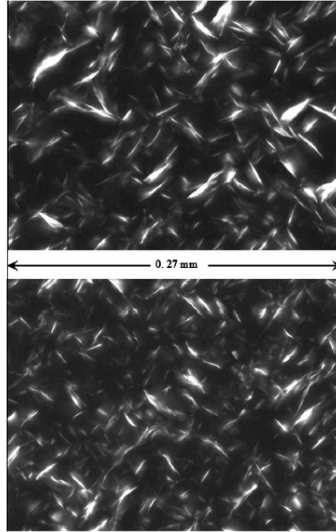


Fig- II-2: l'effet de la vitesse de refroidissement sur la taille et le nombre de cristaux de paraffines (en haut 1.8°F/min, en bas 10.8°F/min).

II.3 L'équilibre thermodynamique de phase solide/liquide:

La cristallisation des paraffines dans les bruts engendre un équilibre de phase thermodynamique liquide /solide. Des modèles thermodynamiques rendant compte de cet équilibre ont été développés. Ces modèles prédisent la température de cristallisation commençante, Θ_{cc} , ainsi que la quantité de paraffines cristallisées à des températures inférieures, à partir d'un jeu de données expérimentales. Nous pouvons citer à titre d'exemple les modèles thermodynamiques développés par Won,1986, par Hansen,1983, et par Calange,1996. Ces modèles sont représentés par la constante d'équilibre, K , qui représente le rapport des concentrations d'une composante dans son état liquide et solide.

La principale limitation de ces modèles thermodynamiques est qu'ils ne tiennent pas compte de l'effet dynamique résultant de l'écoulement. La conséquence est qu'ils ne sont pas adaptés à la détermination de l'évolution temporelle de l'épaisseur de dépôt en conduite.

II.4 Les mécanismes mis en jeu dans la formation du dépôt:

Dans l'ensemble de la littérature (Burger et al.1981; Hsu et al. 1994; Lund,1998;Kok et al.2000; Maurel et al.2000; Hernandez et al.2003; Azevedo et al.2003 etc..) on indique que la bonne modélisation du dépôt de paraffine requiert une bonne compréhension des mécanismes responsables du transport de la paraffine vers la paroi. En effet, l'apparition des cristaux de paraffines dans le brut n'est pas suffisante pour qu'il y ait dépôt. Kok et Saracoglu, 2000 proposent trois conditions nécessaires pour que celui-ci ait lieu :

La température de la paroi de la conduite et d'une partie du brut doit être inférieure à la Θ_{cc} du brut,

Il doit exister un gradient radial négatif de température entre l'intérieur et l'extérieur de la conduite,

Les défauts de surface doivent être assez importants pour que les cristaux puissent se fixer sur la paroi.

Ce dernier point est discutable puisque, en réalité, quelque soit l'état de surface de la conduite, il y a toujours existence d'un dépôt. L'étude de Lund, 1998, montre qu'un bon état de surface ne fait que retarder l'apparition du dépôt. En revanche ce point souligne la difficulté d'expliquer comment et pourquoi ces molécules apolaires "s'accrochent" à la paroi.

D'après ces études, le flux de matière déposée augmente avec le gradient de température entre le brut et la paroi de la conduite, tandis qu'il décroît lorsque le débit d'écoulement augmente. Il en ressort essentiellement trois mécanismes probables qui participeraient au déplacement de la paraffine vers la paroi à savoir, la diffusion moléculaire, la diffusion brownienne et la dispersion par cisaillement. Le rôle de la gravité sur la croissance du dépôt est écarté à l'unanimité dans la littérature. En effet des tests en conduites horizontales et verticales effectués dans les mêmes conditions mènent aux mêmes résultats. De plus le test effectué sur la boucle LYRE à l'IFP par Ph. Maurel et al.1999 montre que le dépôt obtenu en conduite horizontale est relativement homogène sur la périphérie.

II.4.1 La diffusion moléculaire:

La diffusion moléculaire est le principal mécanisme moteur de la croissance du dépôt évoqué dans la littérature disponible. L'existence d'un gradient de concentration de la paraffine dissoute dans le brut engendre automatiquement la diffusion moléculaire. En effet, le brut transporté dans le pipeline est refroidi par l'environnement thermique extérieur, il apparaît donc un gradient de température dans le fluide. Dans tous les endroits du brut où la température est inférieure à Θ_{CC} , les normales paraffines de poids moléculaire les plus élevées, précipitent. Il y a donc localement une phase solide en équilibre avec le brut. Nous avons vu dans le paragraphe ci-dessus que la solubilité des paraffines est une fonction décroissante de la température. Ainsi, l'apparition d'un gradient de température dans le fluide engendre un gradient de concentration de paraffines dissoutes. L'huile près de la paroi est plus froide que celle dans le coeur du fluide. C'est donc en proche paroi qu'il y a un déficit d'alcanes dissous. Pour le combler, le système (huile + paraffines dissoutes) s'équilibre en faisant migrer des paraffines à l'état liquide du coeur du fluide vers la paroi où elles précipitent à leur tour. Pour quantifier le flux de migration des paraffines, la première loi de Fick est utilisée dans la littérature :

$$\frac{dm_m}{dt} = \rho_d A D_m \frac{dC_l}{dr} \quad (\text{II-1})$$

ou ρ_d , D_m , C_l et A sont respectivement la masse volumique du dépôt, le coefficient de diffusion du brut, la concentration de paraffine dissoute et la surface de déposition.

Burger et al. 1981, proposent d'écrire cette équation en fonction de paramètres mesurables tels que la solubilité de la paraffine, $\frac{dC_l}{d\Theta}$ et le gradient de température, $\frac{d\Theta}{dr}$:

$$\frac{dm_m}{dt} = \rho_d A D_m \frac{dC_l}{d\Theta} \frac{d\Theta}{dr} \quad (\text{II-2})$$

$\frac{d\Theta}{dr}$ se détermine en résolvant l'équation de la chaleur dans la conduite.

La détermination du coefficient de diffusion, D_m , est empirique. Burger et al. 1981 suggèrent d'utiliser la corrélation proposée par Wilke et Chang, 1995 :

$$D_m = 7.4 \times 10^{-9} \times \frac{\Theta(\varepsilon M)^{\frac{1}{2}}}{\mu V^{0.6}} \quad (\text{II-3})$$

ε est une constante, M est la masse molaire du solvant. D'après ces mêmes auteurs, le coefficient $V^{0.6}$ est proportionnel à la température absolue Θ . Le coefficient de diffusion peut donc se réduire comme suit :

$$D_m = \frac{\chi}{\mu} \quad (\text{II-4})$$

χ est une constante à déterminer et μ est la viscosité du brut. L'équation ci-dessus est utilisée par beaucoup d'études de prédiction du dépôt. Le coefficient χ est pris comme paramètre ajustable qui permet de caler les résultats des modèles aux résultats expérimentaux.

Cette modélisation signifie que le dépôt formé est uniquement l'accumulation, près de la paroi, d'une partie de paraffines cristallisées. En réalité, les cristaux de paraffines se recouvrent et s'emboîtent entre eux et forment un réseau tridimensionnel emprisonnant de l'huile. Le dépôt doit être vu comme un milieu poreux dont la matrice est formée par les molécules de paraffines et dont les cavités sont remplies d'huile (Cf. Fig-II-3).

Les observations effectuées sur la nature et l'évolution du dépôt montrent que celui-ci vieillit au cours du temps. Ce vieillissement, appelé en anglais "aging", se traduit par la diminution de la quantité du brut emprisonné dans la matrice. De ce fait le dépôt "durcit". Une des explications possible de ce phénomène est l'existence d'un mécanisme de diffusion d'une part de la paraffine vers le dépôt et d'autre part de l'huile vers l'écoulement.

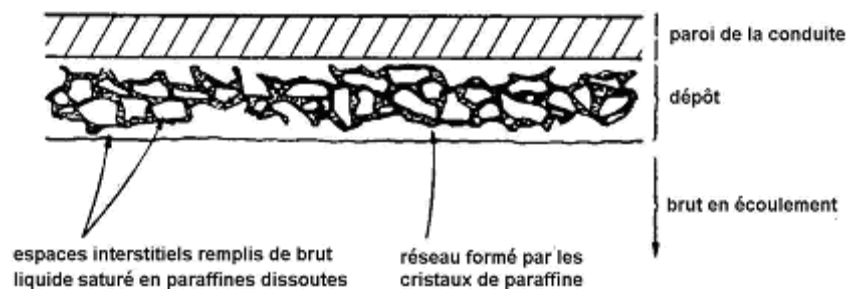


Fig- II-3: Représentation schématique du réseau poreux constituant le dépôt de paraffines d'après Burger et al. 1981

Singh et al. 2000, proposent d'ajouter la diffusion moléculaire des paraffines dissoutes à l'intérieur du dépôt. L'équation qui régit cette diffusion est toujours l'équation de Fick :

$$\frac{dm_m}{dt} = \rho_d A D_e \left. \frac{dC_l}{dr} \right|_{wall} \quad (\text{II-5})$$

Le coefficient de diffusion effectif D_e , à l'intérieur du milieu poreux, est calqué sur celui utilisé dans les milieux poreux formés par des flocons (Cussler et al. 1988) :

$$D_e = \frac{D_m}{1 + \alpha^2 \frac{F_w^2}{(1 - F_w)}} \quad (\text{II-6})$$

ou F_w et α sont respectivement la fraction massique de la paraffine solide dans le dépôt et le rapport d'aspect moyen des cristaux de paraffine.

Même quand la croissance du dépôt s'arrête, il existe toujours de la diffusion moléculaire à l'intérieur du dépôt. En effet, l'huile piégée dans les cavités du dépôt a, en principe, perdu une grande quantité de ses paraffines lourdes. Sachant qu'une partie de cette huile est en contact avec le brut en écoulement par le biais de l'interface dépôt/huile, il se crée donc un gradient de concentration en paraffine dans le dépôt et par conséquent la diffusion au sein du dépôt peut se produire. Ces nouveaux cristaux de paraffine formés occupent un volume donné dans le dépôt et par conséquent expulsent ce même volume d'huile emprisonné vers l'écoulement.

II.4.2 La diffusion brownienne:

Burger et al. 1981, sont les premiers à discuter de la contribution éventuelle de la diffusion brownienne sur la croissance du dépôt de paraffine. Ils suggèrent que, dans les régions du fluide où la température est inférieure à Θ_{CC} , les paraffines précipitent et restent en suspension dans le brut. Ces cristaux entrent en collision avec les molécules du brut du fait de l'agitation thermique. Ceci a pour conséquence le déplacement des paraffines vers les zones de plus faibles concentrations. Pour caractériser cette diffusion brownienne, l'équation de Fick est une fois de plus utilisée :

$$\frac{dm_B}{dt} = \rho_d A D_B \left. \frac{dC_s}{dr} \right|_{wall} \quad (\text{II-7})$$

C_s est la concentration de cristaux de paraffines et $D_B = \frac{R\Theta}{6\pi\mu aN}$ est le coefficient de diffusion

brownienne avec R la constante des gaz parfait, N le nombre d'Avogadro et a le diamètre équivalent des cristaux de paraffine.

Plusieurs auteurs ont négligé le rôle de la diffusion brownienne en s'appuyant sur le fait qu'en principe celle-ci devrait éloigner les cristaux de la paroi car la concentration de la paraffine en suspension au coeur du fluide est plus faible que celle en proche paroi. Azevedo et al. 2003, reprennent l'argument de Burger et al. 1981, pour justifier l'éventuel rôle de cette diffusion : ils considèrent que les cristaux proches de la paroi sont pris dans le dépôt et donc deviennent immobiles rendant la concentration de paraffines en suspension près du dépôt quasi nulle. Dans ce cas, la figure II-4 représente éventuellement la distribution des cristaux de paraffine dans la conduite.

Nous constatons sur ce schéma que la diffusion brownienne transporte une partie des cristaux vers la paroi et l'autre partie vers le coeur du fluide.

Alors que Burger et al. 1981, concluent que la diffusion brownienne ne joue pas un grand rôle sur la croissance du dépôt, nous allons passer en revue dans la paragraphe II-4-6, les arguments qu' Azevedo et al. 2003, présentent pour arriver à la conclusion inverse.

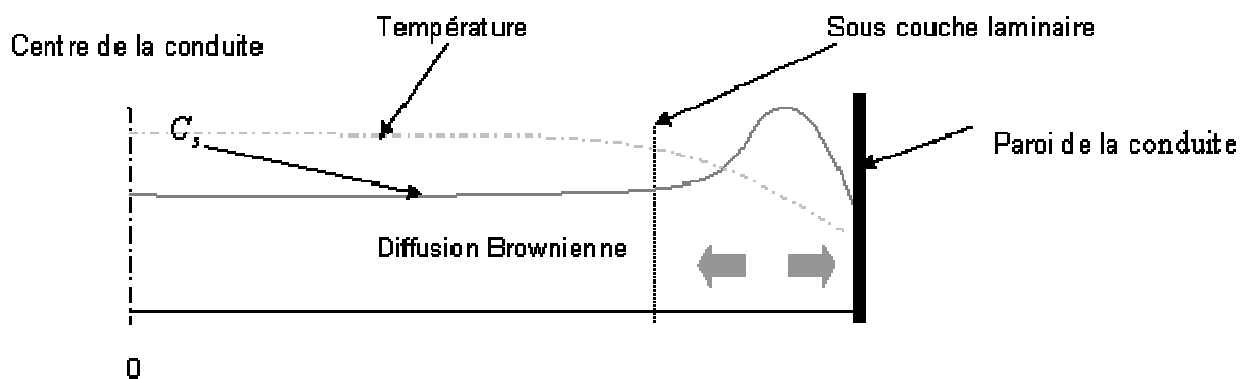


Fig- II-4: Concentration des paraffines précipitées dans la conduite Burger et al. 1981.

II.4.3 La dispersion par cisaillement :

Tout comme la diffusion brownienne, la dispersion par cisaillement est la mise en mouvement radiale des cristaux de paraffine en suspension. Le mouvement d'une particule solide dépend de sa taille, sa densité, sa forme et de sa mobilité au sein du fluide. Les études effectuées sur ce sujet montrent que le transport radial des particules sphériques sous cisaillement est dans la direction des cisaillements les plus faibles. Dans un écoulement de poiseuille, cela signifie que les particules s'éloignent de la paroi et vont en direction du coeur du fluide. Azevedo et al. 2003, pensent que les formes des cristaux de paraffines sont très différentes des particules sphériques utilisées dans ces études; par conséquent nous ne pouvons pas appliquer les résultats de ces études au dépôt de paraffines.

Plusieurs chercheurs ont conduit des études expérimentales dans des boucles de laboratoire pour observer le rôle joué par le cisaillement. Pour ce faire, les expérimentateurs s'affranchissent de la participation de la diffusion moléculaire en maintenant la paroi de la conduite et celle du fluide à la même température. Le fluide pompé est un mélange de cristaux de paraffines et d'huile. Le gradient de température nul dans la conduite induit qu'il ne peut pas y avoir un gradient de concentration d'alcanes solides près de la paroi. En conséquence, si il y a formation de dépôt de cire, c'est uniquement la dispersion par cisaillement qui en serait la cause. Tous les auteurs (Burger et al. 1981; Hamouda et al. 1995; Hernandez et al. 2003) qui ont réalisé ces expériences notent qu'il n'y a pas de dépôt formé. Azevedo et al. 2003, concluent que la dispersion par cisaillement n'est pas un mécanisme de premier ordre pour la migration de la paraffine vers la paroi. Néanmoins, la dispersion par cisaillement est représentée par la loi de Fick :

$$\frac{dm_c}{dt} = \rho_d A D_c \left. \frac{dC_s}{dr} \right|_{wall} \quad (II-8)$$

Ou $D_c = \frac{a^2 \dot{\gamma} C_s}{10}$ est le coefficient de dispersion approximé par Eckstein et al. 1971 avec a le diamètre équivalent des cristaux de paraffine et $\dot{\gamma}$ le taux de cisaillement.

II.4.4 Le taux d'incorporation des cristaux de cire dans le dépôt :

Le flux total de paraffines transportées vers le dépôt est la somme des flux massiques dus aux trois mécanismes détaillés ci-dessus. Il vérifie l'égalité suivante :

$$W_t = \overbrace{\rho_d A D_m \frac{dC_l}{dr}}^1 + \underbrace{\rho_d A (D_B + D_c) \frac{dC_s}{dr}}_2 \Big|_{wall} \quad (II-9)$$

Actuellement, dans la littérature, il est accepté que la totalité des paraffines transportées vers le dépôt par la diffusion moléculaire, via le terme (1) de l'équation (II-9), soit totalement incorporée dans celui-ci.

En revanche, pour les paraffines déjà cristallisées en suspension dans le brut (terme (2) de l'équation (II-9)), Burger et al.1981, font l'hypothèse qu'elles ne sont pas toutes incorporées dans le dépôt. Ils proposent donc un modèle d'incorporation de cette quantité, m_i où ils stipulent que ce taux est proportionnel à la surface disponible à l'interface A, au taux de cisaillement à la paroi $\dot{\gamma}$ et à la concentration de particules solides près de l'interface, C_{sw} d'où, la relation :

$$\frac{dm_i}{dt} = \kappa C_{sw} \dot{\gamma} A \quad (II-10)$$

κ est une constante à déterminer expérimentalement.

Il est à noter que ce taux est souvent attribué, dans la littérature, uniquement à la dispersion par cisaillement, en négligeant la diffusion brownienne sans plus de démonstration.

Le flux total de paraffine déposée W_d (et non plus transportée W_t dans la relation II-9) est donc, selon Burger et al. 1981, la somme des paraffines amenées par diffusion moléculaire et une partie des cristaux de paraffine déplacée radialement par le cisaillement et la diffusion brownienne. Il s'exprime par la relation suivante :

$$W_d = \rho_d A D_m \frac{dC_l}{dr} + \kappa A C_{sw} \dot{\gamma} \quad (II-11)$$

II.4.5 Facteurs limitant de la croissance du dépôt :

II.4.5.1 L'isolation thermique du dépôt de paraffines:

L'isolation thermique, due au dépôt de paraffine qui se forme, joue un rôle important pour limiter la croissance du celui-ci. En effet la conductivité thermique d'un dépôt de paraffine varie généralement entre 0.10 et 0.35 W m⁻¹K⁻¹ selon la quantité d'huile emprisonnée. Elle est supérieure à la conductivité du brut seul (environ 0.1 W m⁻¹K⁻¹). Lorsque le dépôt croît, l'effet d'isolation thermique également. C'est à dire que le gradient de température à la surface du dépôt tend à diminuer. Sachant que le flux de paraffine déposée par diffusion moléculaire (principal mécanisme de transport de paraffine) est directement proportionnel au gradient thermique, l'évolution de l'épaisseur du dépôt au cours du temps est donc non linéaire.

La conductivité thermique dépend de la structure du dépôt, i.e. de la fraction de paraffine contenue dans le dépôt. Ce paramètre est important afin de pouvoir caractériser l'effet d'isolation thermique qui permet d'en déduire le flux de matière déposée au même instant.

II.4.5.2 Le cisaillement:

Les observations expérimentales de la structure du dépôt laissent à penser que celui-ci est plus en moins déformable sous l'effet de l'écoulement. La contribution du cisaillement façonne sans doute sa structure finale. Hernandez et al.2003 ont étudié l'évolution temporelle de la perte de charge dans des conditions isothermes. Ils ont généré un dépôt de paraffine en créant un gradient de température dans l'écoulement. Ensuite ils l'annulent en diminuant la température de brut en entrée de la conduite afin de mesurer l'influence des forces de cisaillement sur le dépôt. Après quelques heures, ils atteignent un écoulement isotherme. Dans ces conditions les pertes de charge ont diminué au cours du temps. Les auteurs concluent que le cisaillement n'influe pas sur la croissance de dépôt car une réduction de section aurait eu pour effet une augmentation de perte de charge. Ils expliquent également que cette diminution de perte de charge est peut être due aux "polissages" du dépôt par les forces de cisaillement i.e. les forces de cisaillement arrachent des cristaux de cire au dépôt et le rendent plus "lisse". Ils montrent qu'en régime d'écoulement laminaire ou faiblement turbulent, une augmentation de débit s'accompagne d'une augmentation de la vitesse de déposition tandis qu'en régime

d'écoulement fortement turbulent, c'est le contraire. Cette tendance est certainement due à l'érosion du dépôt par le cisaillement. Hamouda et al.1995 montrent dans leur étude que l'effet de la décroissance du dépôt à cause du cisaillement a lieu pour $\dot{\gamma}$ entre $3500s^{-1}$ et $5500s^{-1}$.

Toma et al,2004 traduisent cette idée d'érosion en introduisant la notion d'événements tourbillonnaires turbulents, appelés "burst", qui se créent dans la couche limite et impactent régulièrement le dépôt avec une contrainte supérieure à la résistance de celui-ci. De plus ces arrachements, d'après les auteurs, seraient sélectifs. Plus l'agrégat de paraffine ou un cristal de paraffine pure est petit, et plus celui-ci est propice à l'arrachement. Ce mécanisme d'érosion fonctionne bien, selon les auteurs, si les cristaux de paraffines sont faiblement liés entre eux. Ce mécanisme d'érosion est difficile à modéliser, tel qu'il est, dans une approche globale car il faut connaître la distribution spatiale des dimensions des cristaux de cire.

II.4.6 Discussion sur les prédictions des modèles existants:

Dans une partie des articles disponibles, les auteurs négligent les contributions de la dispersion par cisaillement et de la diffusion brownienne. Ainsi, la quantité de masse de dépôt est égale au flux de matière transportée par la diffusion moléculaire seule.

Les prédictions faites par ce modèle sont souvent raisonnablement conformes aux résultats obtenus dans des boucles de laboratoire. Cela s'explique car la constante χ de l'équation (II-4) est très souvent un paramètre ajustable qui permet de bien corrélérer les données expérimentales avec les résultats obtenus par le modèle. Toutefois les confrontations avec l'expérience sont rapidement dégradées dès lors que les conditions expérimentales sont modifiées si la constante χ n'est pas réajustée (Cf.Fig-II-5). Cela revient à considérer que le dépôt résulte uniquement de paraffines cristallisées qui s'accumulent à la paroi alors qu'en réalité le dépôt est constitué d'un mélange des paraffines et d'huile piégée.

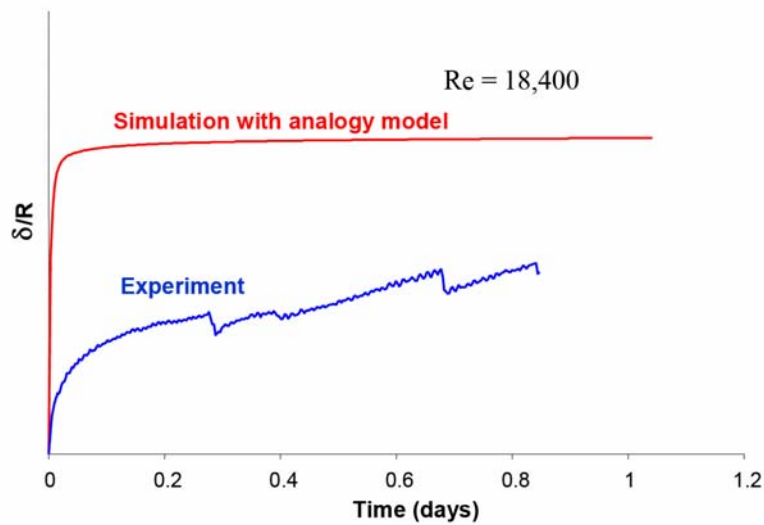


Fig- II-5:Exemple de comparaison d'une épaisseur d'un dépôt obtenue avec un modèle basé sur la diffusion moléculaire et de l'épaisseur obtenue expérimentalement tirée de Venkatesen et al. 2007.

Burger et al. 1981, et d'autres auteurs négligent l'effet de la diffusion brownienne sans explication ni hypothèses précises. Ils attribuent le taux d'incorporation des cristaux en suspension dans le dépôt uniquement à la dispersion par cisaillement. A contrario, Azevedo et al. 2003, ont cherché à démontrer expérimentalement que la dispersion par cisaillement est négligeable. Ainsi, pour eux, le taux d'incorporation serait dû uniquement à la diffusion brownienne. Leur principal argument repose sur les essais cités dans la section II-4-2, à savoir l'inexistence de dépôt de paraffine lorsque la conduite est en condition adiabatique. Nous pensons que les essais à flux de chaleur nul ne reflètent pas la réalité dans la conduite. En effet, ces essais ont lieu dans un environnement où le fluide et la paroi de la conduite ont la même température. La distribution du cisaillement est donc linéaire et maximum à la paroi. Les cristaux de paraffines iront vers le centre de la conduite, là où le cisaillement est minimum. En conséquence, il ne peut pas y avoir dépôt de paraffines. Dans les conditions réelles, l'écoulement dans la conduite est non isotherme, le fluide près de la paroi devient de plus en plus visqueux à cause de la température. Le profil de vitesse ressemblerait donc à une "cloche" avec une tangente presque verticale à la paroi. Ainsi dans ces conditions le cisaillement maximum n'est pas à la paroi et la distribution des cisaillements ressemble à la configuration de la figure II-6. Nous constatons qu'il peut y avoir une zone où les cristaux de

paraffine migrent vers la paroi. Nous en déduisons que le taux d'incorporation des cristaux de paraffine en suspension dans le dépôt peut être dû aux deux mécanismes.

Il reste tout de même quelques zones d'ombre concernant le modèle de taux d'incorporation représenté par l'équation (II-11). Nous constatons que, lorsque l'on augmente le cisaillement, cette quantité augmente également alors qu'expérimentalement c'est l'inverse qui se produit. A notre avis, dans la littérature, les auteurs n'arrivent pas à quantifier expérimentalement la part apportée par chaque mécanisme puisque les trois mécanismes débouchent sur la même équation de Fick avec trois coefficients différents. C'est probablement la raison pour laquelle ils ont introduit ce taux d'incorporation (équation (II.11)).

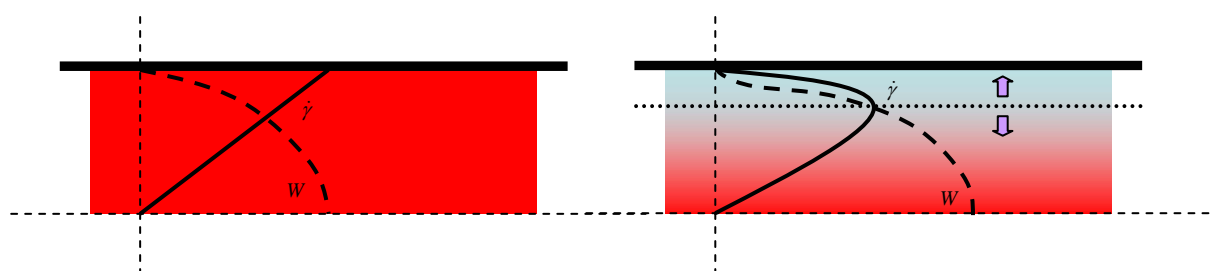


Fig- II-6:Schéma de la distribution des contraintes de cisaillement dans la conduite et de la vitesse d'écoulement. a) cas isotherme, b) cas non isotherme.

Dans toutes les publications consultées, il apparaît que les auteurs étudient les différents mécanismes de migration des paraffines mais n'expliquent pas la "fixation" de celles-ci à la paroi. Les paraffines étant apolaires, les forces électromagnétiques ne peuvent pas être responsables de cette "fixation". Des essais ont été effectués pour mettre en évidence le rôle de la rugosité de la paroi sur la croissance du dépôt. Quelque soit l'état de surface de la conduite, il y a toujours existence d'un dépôt. La rugosité de la paroi ne peut donc pas suffire à expliquer ce "collage".

Dans la suite du rapport, nous proposons une nouvelle approche phénoménologique qui nous permettra d'expliquer la formation du dépôt et sa "fixation" à la paroi. Pour ce faire, il est intéressant de connaître les différents comportements rhéologiques d'un brut paraffinique.

II.5 Le détournement par le problème de la gélification des bruts paraffiniques lors de phase d'arrêt de l'écoulement : le comportement non newtonien des bruts paraffiniques:

Le comportement rhéologique d'un brut paraffinique est très complexe. Il dépend de la température à laquelle il s'écoule, du cisaillement qu'on lui impose mais aussi du passé thermique et mécanique qu'il a subi. Nous récapitulons dans ce chapitre les différentes dépendances.

II.5.1 Thermodépendance

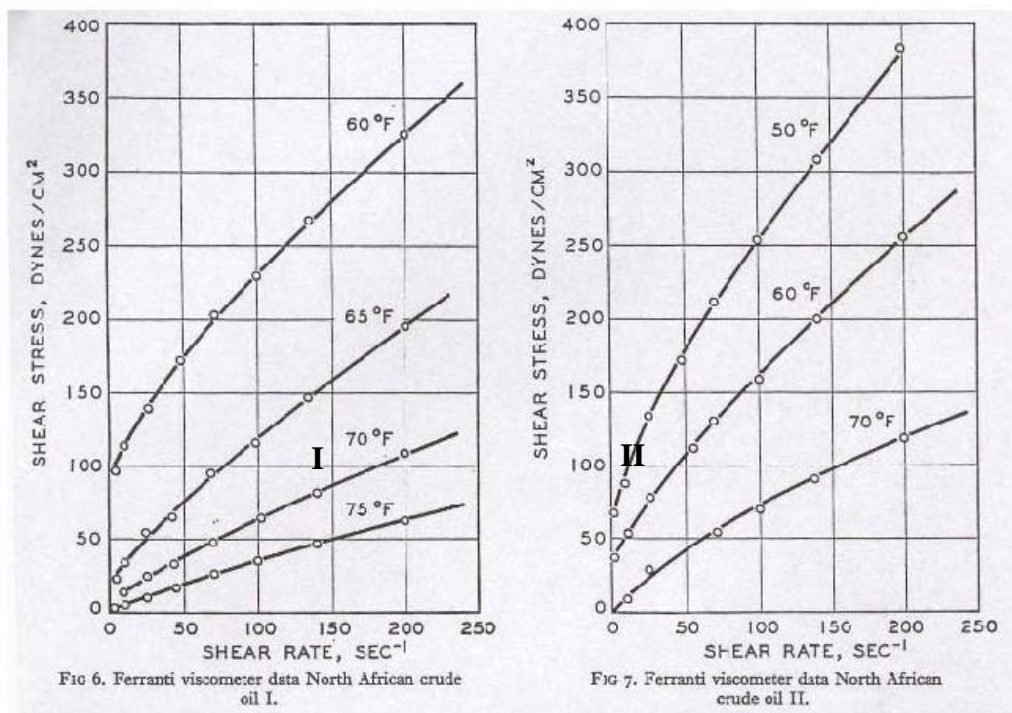


Fig- II-7: Comportements rhéologiques d'un brut Nord Africain pour différentes températures, d'après Barry, 1971.

La thermodépendance des bruts paraffiniques est mise en évidence expérimentalement dans l'article de Barry, 1971, sur des bruts Nord Africains. Lorsque un brut paraffinique s'écoule dans un environnement favorable, $\Theta > \Theta_{CC}$, celui-ci se comporte comme un fluide Newtonien. Cependant, lorsque la température diminue, nous observons un comportement rhéologique non newtonien. La figure II-7 montre les différents comportements qu'un même brut peut avoir en fonction de la température. Lorsque le brut de type I est au-dessus de la température 70 °F, il se comporte comme un fluide Newtonien puisque la contrainte est fonction linéaire du cisaillement :

$$\tau = \mu \dot{\gamma} \quad (\text{II-12})$$

En revanche, lorsque la température est diminuée (70 °F pour le brut de Type II), le comportement change en devenant rhéofluidifiant. Il suit une loi puissance:

$$\begin{cases} \tau = k \dot{\gamma}^n \\ 0 < n < 1 \end{cases} \quad (\text{II-13})$$

Enfin, lorsque la température diminue encore (70 °F pour le Type I, 60 ° pour le Type II), le brut se comporte comme un matériau viscoplastique qui vérifie la loi de Herschel Bulkley avec apparition d'un seuil τ_0 :

$$\begin{cases} \tau = \tau_0 + \mu \dot{\gamma}^n & \text{si } \|\tau\| > \tau_0 \\ \dot{\gamma} = 0 & \text{si } \|\tau\| \leq \tau_0 \end{cases} \quad (\text{II-14})$$

Ces données expérimentales (montrées à titre d'exemples mais généralisables à tous les bruts paraffiniques) montrent clairement que le comportement d'un brut paraffinique est étroitement lié à sa température. Il est clair que les paramètres du brut (τ_0, k, n, μ) dépendent tous de la température.

Le comportement d'un brut paraffinique peut donc varier d'un fluide Newtonien à un comportement de gel avec toute une "continuité" d'états en fonction de la température.

II.5.2 Influence de la vitesse de refroidissement:

Venkatesan et al, 2005 ont étudié l'effet de la vitesse de refroidissement sur la contrainte seuil du dépôt de cire. Dans un premier temps, ils ont évalué le comportement du gel lorsque l'écoulement est très lent voire quand le brut est à l'arrêt. La courbe de la figure II-8 représente

l'évolution de la contrainte seuil en fonction du taux de refroidissement. Nous observons une diminution du seuil d'écoulement lorsque le taux de refroidissement croît.

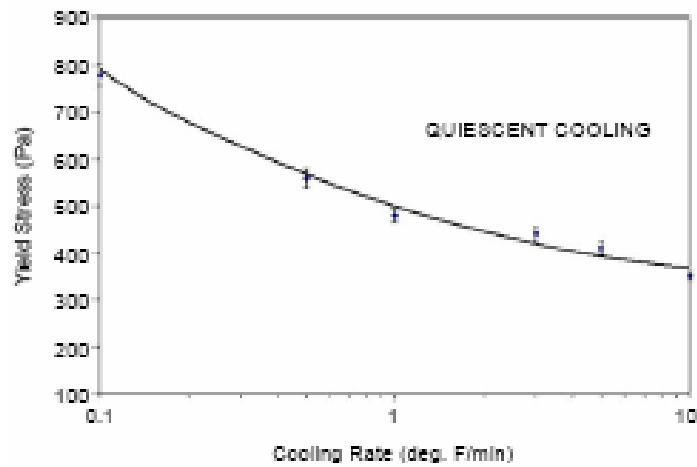


Fig- II-8: La contrainte seuil en fonction de la vitesse de refroidissement.
Le refroidissement est statique (d'après Venkatesean et al.2005).

La même expérience est reproduite en refroidissant le brut sous une contrainte de cisaillement, $\tau_g = 5 Pa$, ce qui correspond aux conditions rencontrées dans les conduites pétrolières. Nous constatons sur la courbe de la figure II-9 que la contrainte seuil augmente avec le taux de refroidissement. C'est le comportement inverse du cas précédent.

Il est très clair que le comportement du gel qui se forme, que ce soit en statique ou sous écoulement, dépend étroitement de la vitesse de refroidissement.

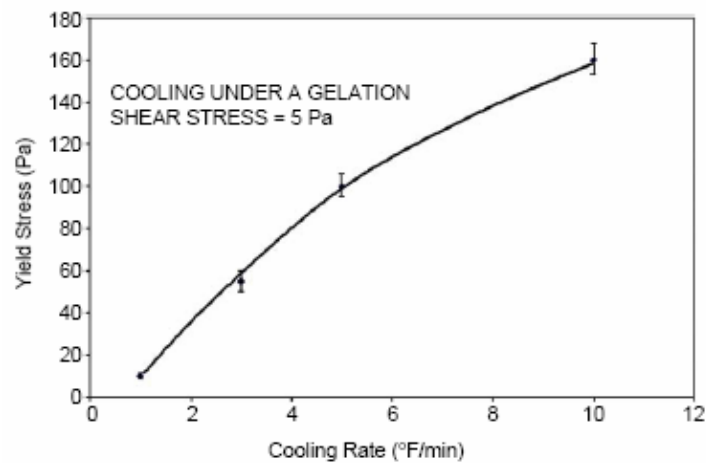


Fig- II-9: La contrainte seuil en fonction de la vitesse de refroidissement. Le refroidissement se fait sous une contrainte de 5Pa (tirée de Venkatesean et al.2005).

II.5.3 Influence de la contrainte de cisaillement lors du refroidissement :

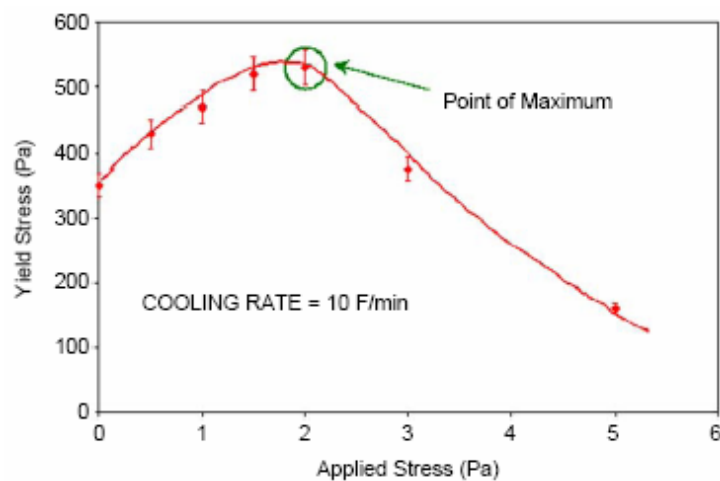


Fig- II-10: Contrainte seuil vs contrainte appliquée lors du refroidissement d'après Venkatesean et al.2005.

Dans ce même article, Venkatesan et al.2005 ont testé l'influence de la contrainte de cisaillement, τ_g , appliquée à l'échantillon lors de son refroidissement. Ils se sont fixés un taux de refroidissement de 10°F/min.

Sur la courbe ci-dessus, nous observons que la contrainte seuil varie sensiblement avec la contrainte de cisaillement τ_g en passant par un extremum.

II.5.4 Influence du taux de paraffine solide sur le comportement du brut:

Li et al. 2003 ont étudié l'influence des cristaux de paraffine sur la viscosité apparente de trente trois bruts paraffiniques.

La mesure de la viscosité commence en chauffant un échantillon de brut à une température largement supérieure à Θ_{CC} afin d'effacer son histoire thermique puis en le chargeant dans un rhéomètre à cylindres coaxiaux chauffé à la même température, et ensuite en le refroidissant jusqu'à la température de mesure avec une vitesse de refroidissement de $0.7 - 1^\circ\text{C min}^{-1}$ et en le gardant à cette température vingt minutes avant la mesure. Au préalable, la quantité des cristaux formés à la température de mesure est déterminée par le biais de la DSC (Differential Scanning Calorimetry).

Le comportement du brut est pseudoplastique dès l'apparition des premiers cristaux de cire. La figure II-11 montre clairement que la viscosité est d'autant plus importante que la concentration en paraffines cristallisées est élevée. Les auteurs proposent un modèle analytique, tirée de la théorie des suspensions, prédisant le comportement de la viscosité en fonction de la concentration massique, c_s en paraffine solide et de la température :

$$\mu_{app} = \mu_0 e^{\frac{E_a}{R\Theta}} (1 - k_0 k(\dot{\gamma}) c_s)^{-2.5} \quad (\text{II-15})$$

ou E_a est l'énergie d'activation de la viscosité

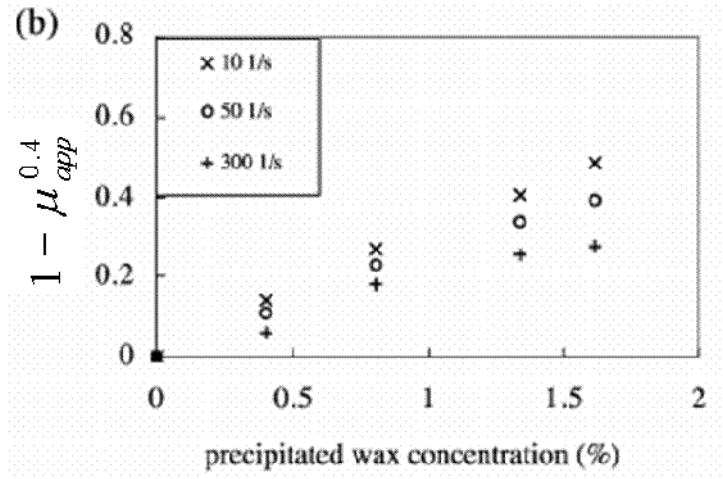


Fig- II-11 l'évolution de la viscosité apparente en fonction de la concentration des cristaux de paraffines (tirée de Li et al.2003).

k est un facteur de cisaillement qui permet de tenir compte du volume effectif occupé par les cristaux de paraffines. Il dépend fortement du taux de cisaillement.

Pour aboutir à ce modèle Li et al,2003 ont fait une hypothèse tirée des constatations expérimentales: Lorsque les cristaux de paraffines apparaissent, ils forment aussitôt des agrégats emprisonnant une quantité de brut. Ainsi la phase dispersée effective du système (Brut + cristaux de cire) occupe un volume plus important que le volume occupé par les cristaux entassés entre eux. (Cf.Fig-II-12).

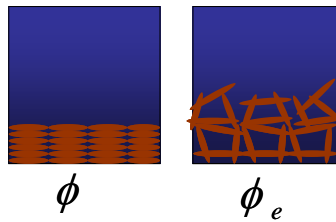


Fig- II-12: Schéma de la concentration effective et de la concentration nette des cristaux de paraffines.

Ils déduisent donc une relation qui lie la concentration volumique effective et la concentration nette de la phase dispersée:

$$\phi_e = k(\dot{\gamma})\phi \quad (\text{II-16})$$

k décroît lorsque le cisaillement augmente. En effet l'augmentation de $\dot{\gamma}$ dissocie certains agrégats et libère la phase liquide. k est égal à l'unité lorsque le brut se comporte comme un fluide newtonien.

D'autre part la relation entre la concentration volumique et la concentration massique s'écrit :

$$\phi = \frac{\rho_0}{\rho_p} c = k_0 c \quad (\text{II-17})$$

avec ρ_0 et ρ_p sont respectivement la masse volumique du solvant et de la paraffine.

L'équation (II-17) peut se mettre sous la forme suivante:

$$\phi_e = k_0 k(\dot{\gamma}) c \quad (\text{II-18})$$

Concrètement la bonne utilisation de ce modèle se déroule en trois étapes:

- La détermination de la quantité de cristaux formés à la température de prédiction de la viscosité équivalente. Cette étape peut être réalisée à l'aide des modèles thermodynamiques (Won et al.1981; Calange,1996) ou par des méthodes expérimentales comme la DSC.
- La détermination des valeurs E_a et μ_0 du brut. Elles sont obtenues en mesurant au moins deux viscosités du fluide dans sa phase Newtonienne.
- Le calcul du paramètre $k_0 k(\dot{\gamma})$ est effectué à partir d'une courbe d'écoulement dans la phase non Newtonienne à une température donnée.

Il est précisé que les hypothèses effectuées pour utiliser la théorie des suspensions imposent un domaine de validité pour ce modèle, à savoir la température dans le fluide est comprise entre la température de cristallisation commençante et le point d'écoulement.

La figure II-13 montre clairement l'adéquation des viscosités prédites avec celles mesurées.

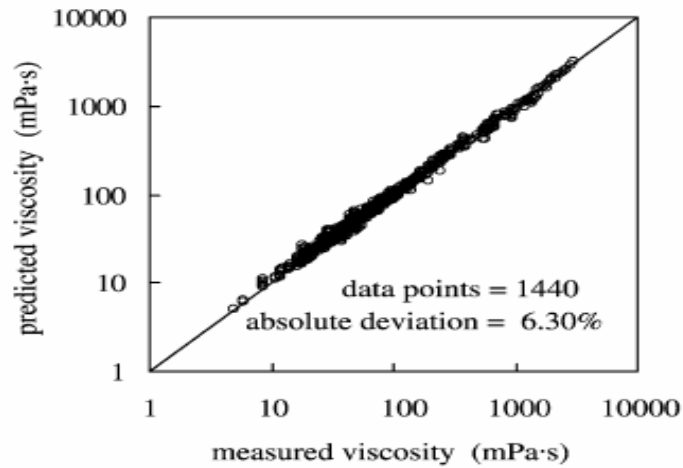


Fig- II-13: Comparaison de la viscosité mesurée avec celle prédite pour 33 bruts paraffiniques tirée de Li et al.2003.

Si ce dernier modèle est séduisant, il ne représente en aucun cas la complexité de comportement du brut déjà évoqué. En particulier il ne fait pas apparaître la notion du seuil d'écoulement. Mais, si l'on se réfère aux travaux de Venkatesan et al,2005 la contrainte seuil est fonction croissante de la fraction cristallisée de paraffines qui est elle même fonction de la température (Cf. Fig-II-14). Il est probable que le comportement du brut devient un comportement à seuil lorsque nous nous mettons à une température donnée et que l'échantillon fait apparaître de plus en plus de cristaux de paraffine. Ce phénomène s'approche plus du comportement du brut au voisinage de la paroi.

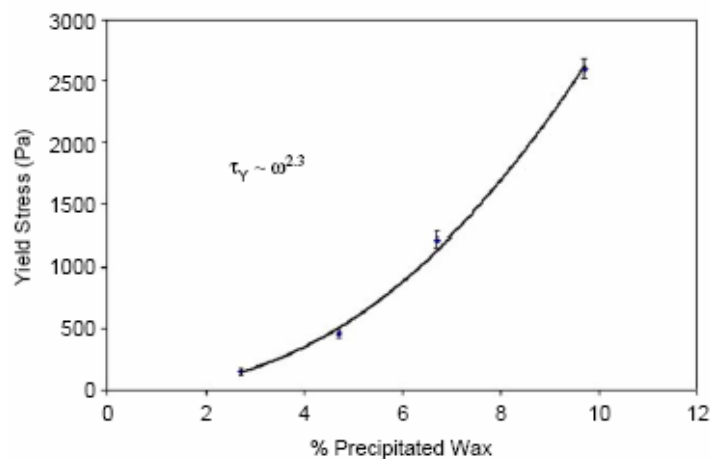


Fig- II-14:Variation de la contrainte seuil en fonction de la quantité de paraffines solidifiées (Venkatesan et al,2005)

Clairement, la contrainte seuil augmente de manière exponentielle en fonction de la quantité de cristaux précipités.

La courbe d'écoulement de la figure II-15, obtenue par El-Gamal et al.1997 pour le brut paraffinique d'Umbaraka montre que ce brut se comporte comme un fluide à seuil à une température de 37°C alors que sa température de prise en gel est de 32°C.

La présence d'une hystérésis dénote le caractère thixotrope de ce brut. Cependant cette thixotropie n'est pas très marquée à cette température.

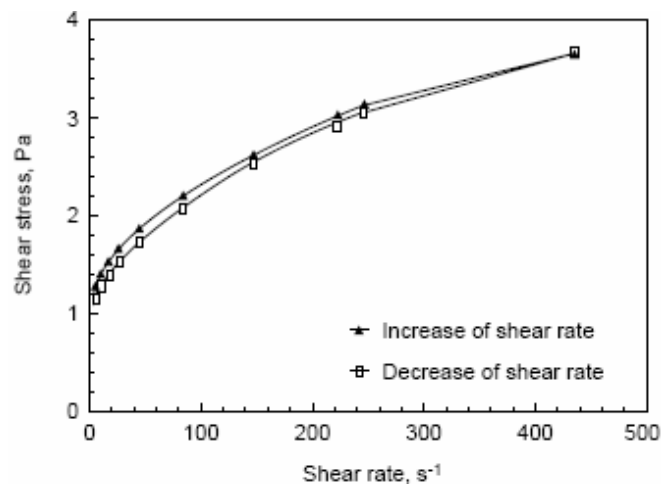


Fig- II-15: Courbe d'écoulement pour le brut d'Umbaraka à 37°C d'après El-Gamal et al.1997

Ces différentes données expérimentales montrent que la viscosité et le seuil d'écoulement dépendent de la quantité de cristaux d'alcane cristallisés.

Ce comportement rhéologique complexe (viscoplasticité et thixotropie) est aisément mis en évidence lors de l'arrêt de l'écoulement d'un brut paraffinique qui va prendre en gel à basse température (Cf. G.Vinay, 2005). Ce problème est généralement traité dans la littérature distinctement du problème du dépôt. La raison essentielle est que, durant l'arrêt, les paraffines qui cristallisent peuvent se structurer en réseau afin de créer un gel, ce qui donne le caractère non newtonien. En écoulement, cette structuration du réseau est plus difficile à cause des forces hydrodynamiques.

Cependant l'enrichissement de l'huile en composé paraffinique au voisinage de la paroi va engendrer un comportement Non Newtonien (et donc probablement le caractère plastique) comme le montre Venkastesan et al.2005. Nous pouvons alors imaginer que cela va

provoquer localement un ralentissement de l'écoulement qui "au bout d'un certain temps" va devenir une couche statique à la paroi que l'on peut finalement considérer comme un dépôt. Les premiers à avoir fait ce lien entre les deux problèmes (dépôt en écoulement et gélification à l'arrêt des bruts paraffiniques) sont Singh et al.2000 en 2000 repris par Venkatesan et al.2005 et Vignati et al.2005 en 2005.

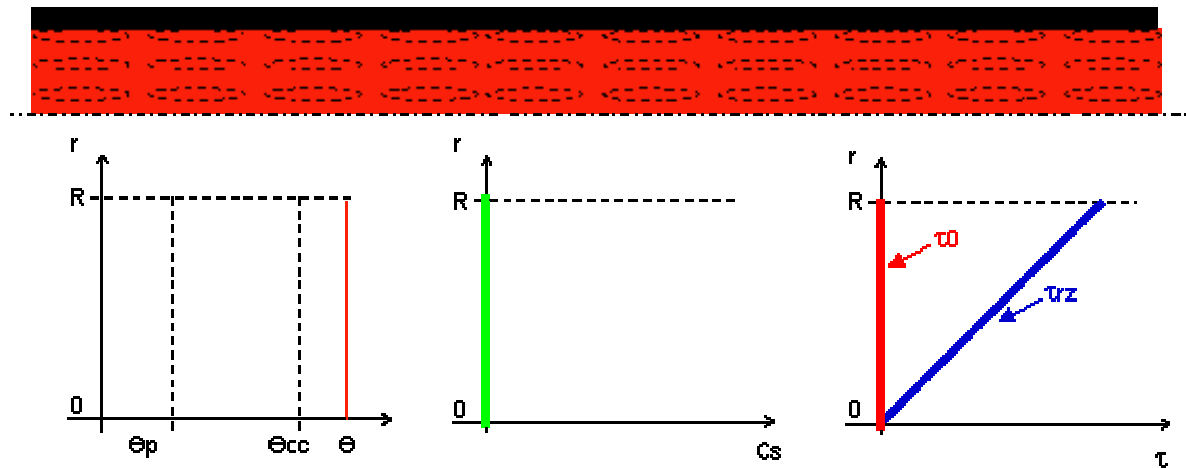
II.6 Notre modèle: un couplage des phénomènes d'écoulement, de gel et des phénomènes de diffusion

Comme nous l'avons vu, les modèles actuels de calcul de dépôt sont relativement simples puisqu'ils sont généralement monodimensionnels dans la direction axiale. Ils sont constitués par une équation de Fick, pour le transport de la paraffine, par les équations de la dynamique, avec un modèle rhéologique simplifié à l'extrême (viscosité équivalente) et par une équation thermique. Dans l'ensemble de ces modèles les équations sont résolues uniquement au sein de l'écoulement (l'intérieur du dépôt n'est pas pris en compte) et l'épaisseur de dépôt résulte uniquement de la "fraction" de paraffine cristallisée. Cependant nous avons pu constater que ces mécanismes ne peuvent pas expliquer, à eux seuls, la totalité du phénomène de dépôt de cire. En effet, ils ne tiennent compte ni de la dynamique de la formation du dépôt de cire ni de la nature de celui-ci (mélange de paraffine et d'huile). Ils n'expliquent pas non plus la "fixation" des alcanes à la paroi. De plus il reste des zones d'ombre concernant la détermination expérimentale des coefficients de diffusion associés aux lois de Fick et au modèle de taux d'incorporation.

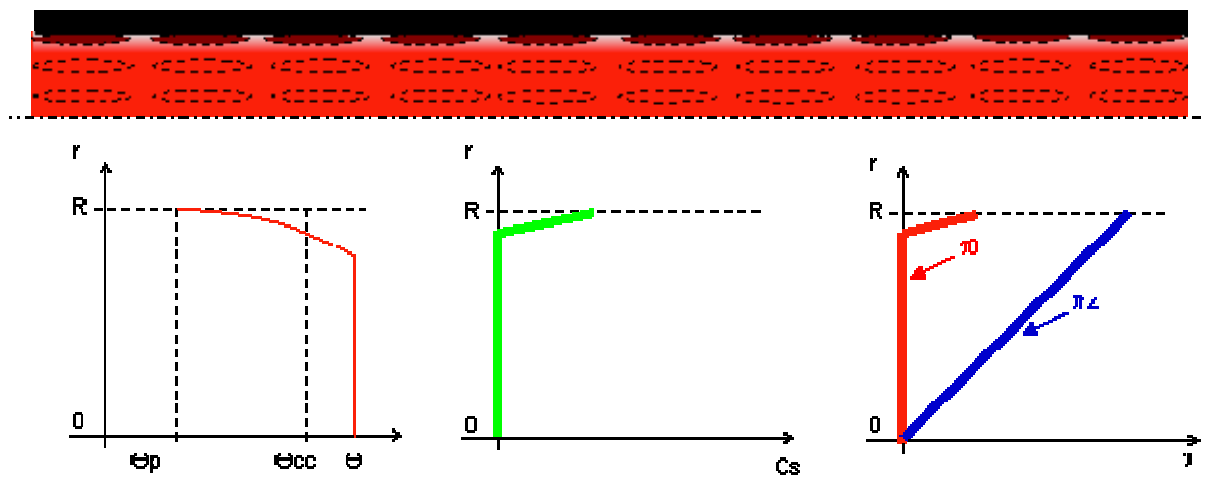
Dans le problème de la gélification du brut durant les phases d'arrêt, l'accent est surtout mis sur le modèle rhéologique qui peut être plus ou moins complexe mais qui est généralement un modèle viscoplastique de type Herschel Bulkley. Dans ce problème l'avancée la plus notable concerne les travaux de Vinay et al. 2005 qui ont mis au point un modèle numérique permettant de modéliser un écoulement d'un fluide viscoplastique thixotrope capable de rendre compte en particulier du développement de zones non cisailées.

Ce que nous proposons c'est de coupler ces deux problèmes et approches pour rendre compte du mécanisme de création des dépôts de paraffine dans sa globalité. Ainsi nous pouvons proposer le mécanisme suivant décrit en 4 étapes selon la figure II-16 :

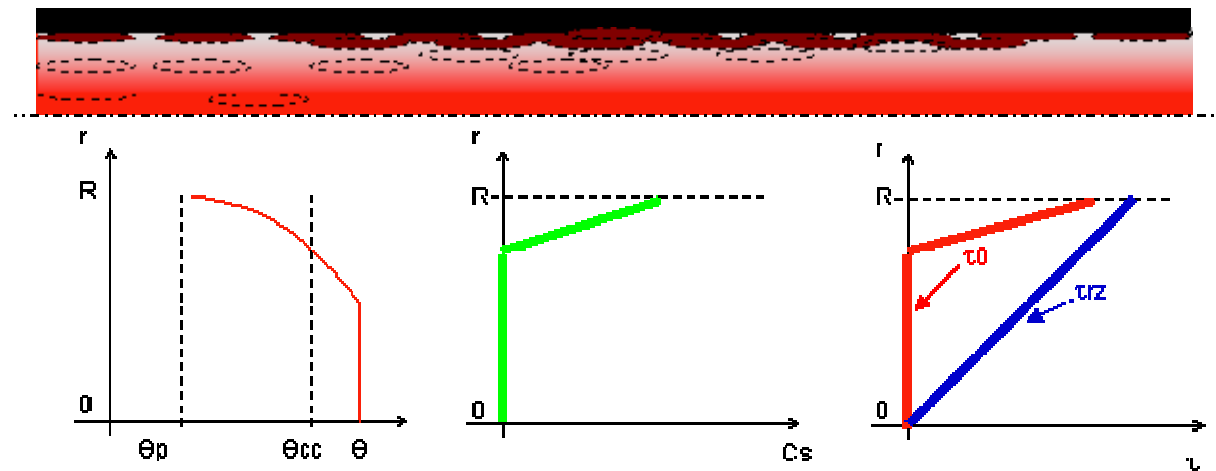
Etape 1: Le brut extrait avec une température supérieure à Θ_{cc} se comporte comme un fluide newtonien.



Etape 2: Le brut s'écoule dans une zone où la température de la paroi de la conduite est inférieure à Θ_{cc} . Les premiers cristaux de paraffine apparaissent près de la paroi.



Etape 3: Un mécanisme d'enrichissement en paraffine dissoute se met en place en proche paroi, grâce à la diffusion moléculaire, modifiant progressivement le comportement rhéologique de la couche fluide près de la paroi



Etape 4: La couche fluide près de la paroi se transforme en gel, ralentit progressivement sous l'effet du changement de rhéologie et s'arrête en formant le dépôt de paraffine car la contrainte seuil de la couche fluide près de la paroi est supérieure à la contrainte de cisaillement à la paroi.

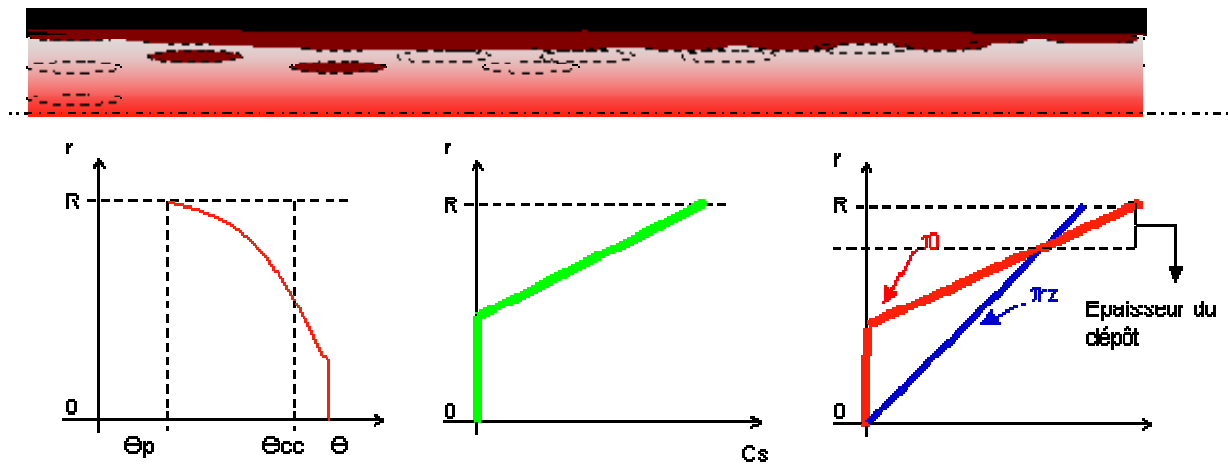


Fig- II-16: Schéma de principe de la nouvelle approche pour la formation du dépôt de paraffine.

En somme, le problème se réduit à l'écoulement d'un fluide viscoplastique thermodépendant et dont la contrainte seuil et la consistance dépendent également de la quantité de paraffines cristallisées.

Dans le chapitre suivant nous allons nous attacher à montrer, à partir d'une expérience de dépôt dans une conduite d'essais, que le mécanisme que nous venons de décrire est raisonnable.

CHAPITRE III: EXPÉRIENCE DE FORMATION DE DÉPÔT DE PARAFFINE DANS UNE BOUCLE D'ESSAI

III.1 Description générale de la boucle LYRE

La boucle LYRE (voir Fig-III-15 et Fig-III-16), construite à Solaize dans les années 90, a pour but de reproduire et d'étudier les problèmes relatifs à la production et au transport de bruts en condition polyphasique. Elle permet en particulier de simuler le système fluide et les conditions thermiques et hydrodynamiques qui se rapprochent le plus possible des conditions du terrain. Toutes sortes de fluides, en particulier hydrocarbures, peuvent être utilisées exceptés les gaz acides. Les volumes de liquide mis en jeu sont de l'ordre de 500 litres. L'installation a été conçue pour travailler dans des conditions thermiques variant de 273 K (0°C) à 323 K (50°C) et de la pression atmosphérique à 100 bar. La circulation des fluides est assurée à l'aide d'une pompe de type Moineau pour le liquide et d'un compresseur à membranes pour le gaz. La variation des débits de chacun de ces éléments permet de reproduire les écoulements polyphasiques classiques.

La conduite d'essais horizontale, d'un diamètre de 2'' ($\approx 0,05$ m) et de 140 mètres de long est constituée d'une double enveloppe, permettant la circulation à contre-courant d'un fluide caloporteur, et d'un isolant thermique, limitant les pertes d'énergie avec l'extérieur. Cette conduite d'essai horizontale se termine, avant l'entrée des fluides dans le séparateur, par un riser vertical ascendant de trois mètres de haut suivi d'une partie descendante avec une pente. Cinq dérivation viennent compléter la conduite d'essai. L'une, d'une longueur de 22 mètres, reproduit une variation de topographie (point bas), trois reproduisent des singularités géométriques de lignes d'un mètre (jumpers) et une autre, d'une longueur de 8 mètres, permet de reproduire un gradient thermique pariétal, moteur des phénomènes de déposition de paraffines qui nous intéressent particulièrement dans cette étude. Cette dernière est appelée

zone paraffine, ZP. La température de la paroi de la zone paraffine est contrôlée indépendamment de la température dans le reste de la boucle grâce à des zones thermiques indépendantes. Il est donc possible de générer un gradient de température, entre la paroi et le fluide, à l'origine du phénomène de dépôt de paraffines. Cette dérivation est constituée en entrée d'une section de cinq mètres de long permettant le développement hydrodynamique de l'écoulement, d'une section d'étude de un mètre de long et enfin d'une section de deux mètres de long en sortie permettant de limiter les effets de bords. La section d'étude peut être démontée après chaque essai afin d'observer, prélever, quantifier et analyser le dépôt. Une cellule "témoin" est disponible également sur la conduite d'étude, celle ci épouse parfaitement la courbure de la conduite (Cf. Fig-III-16 (e)). Cette cellule se démonte facilement et permet d'observer ponctuellement (à pression atmosphérique, un arrêt d'écoulement d'environ 10 min est nécessaire) la formation du dépôt de paraffine. La perte de charge sur 7 mètres de long est mesurée ainsi que les températures à l'entrée et à la sortie des fluides "process" et caloporteurs.

III.2 Instrumentation de la boucle LYRE:

La boucle Lyre est entièrement instrumentée par des capteurs de pertes de charge, de température et de débit. Ainsi, nous pouvons suivre, au cours de temps, l'évolution de ces paramètres.

Pour mesurer les températures dans la boucle, en particulier dans la manchette à paraffine, on utilise des thermocouples de type T dont la précision est de 0,6 °C. Dans la zone paraffine, ces capteurs sont placés à une section située à 5 mètres de l'entrée. Ils sont installés à différentes profondeurs comme le montre la figure Fig-III-16 (c).

Afin de mesurer la perte de charge dans la manchette paraffine, un capteur différentiel de pression à membrane est utilisé. Son principe de fonctionnement est de transformer la déformation d'une membrane sous l'effet d'une pression en une variation de capacité. Pour réaliser cela, une des armatures d'un condensateur est sur la membrane qui se déforme et l'autre est sur une pièce solidaire du corps d'épreuve, mais non soumise à la déformation. On a donc un condensateur dont la capacité est en relation directe avec la pression appliquée. La précision d'un tel capteur, dont la gamme varie de 0 à 500 mbar, est de 0.45 mbar.

Les fluides "process" circulant dans la boucle sont des hydrocarbures. Afin de limiter tout problème de colmatage (et donc de transmission de pression) dans les prises de pression reliant le capteur à la conduite, on évite toute intrusion du fluide process (pétrole brut paraffinique). Pour cela, un fluide tampon, avec une densité supérieure aux bruts, est utilisé comme intermédiaire. Nous pouvons donc mesurer la perte de charge dans la conduite, $\Delta P = P'_2 - P'_1$, via la différence de pression induite par le fluide tampon sur le capteur différentiel à membrane, $P_2 - P_1$. D'une part on a $P'_1 = P_1 + \rho_T \Delta z$ et $P'_2 = P_2 + \rho_T \Delta z$ avec ρ_T la densité volumique du fluide tampon. D'autre part les hauteurs des deux branches de prise de pression sont identiques. Nous en déduisons que la mesure de la perte de charge dans la manchette à paraffine revient à mesurer la différence de pression entre P_1 et P_2 (Cf. Fig-III-1).

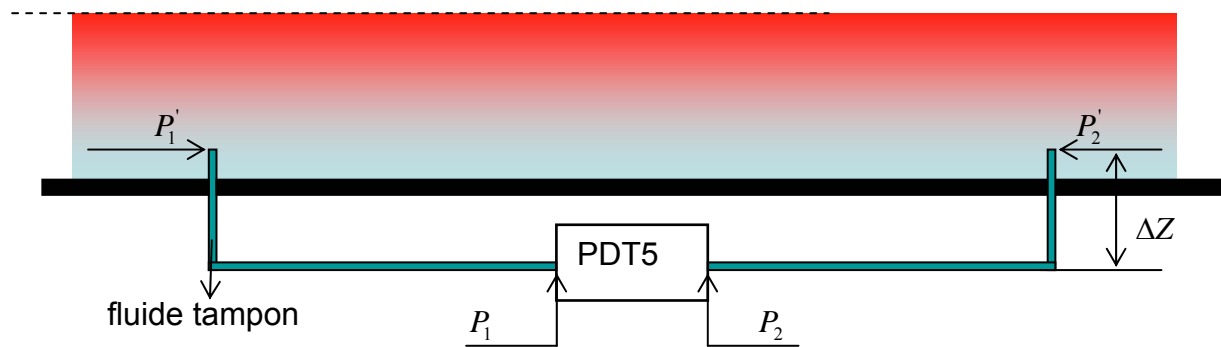


Fig- III-1: Principe de la mesure de la perte de charge dans la manchette à paraffine.

Cependant il faut noter que la précision de cette mesure va dépendre de la qualité du contact entre le fluide tampon et le brut paraffinique puisqu'il n'y a pas de barrière mécanique entre les deux. Deux sources d'imprécision sont identifiées: l'une si le brut à l'interface se "gélifie" et l'autre si une partie du fluide tampon est remplacée (par des effets hydrodynamiques par exemple) par du fluide process (Cf. Fig-III-2).

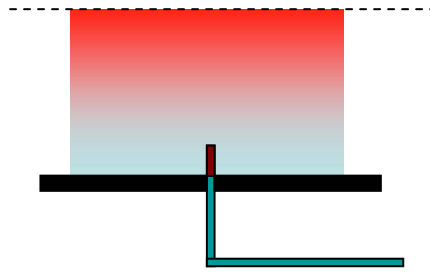


Fig- III-2: Bouchon dans le piquage du capteur pour la mesure de la perte de charge.

Dans cette étude, nous allons essentiellement utiliser les capteurs différentiels de pression PDT5 et PDT6 (Cf. Fig-III-16) qui mesurent respectivement les pertes de charge dans la manchette paraffine (7 m), ZP et les pertes de charge entre la sortie de point bas et l'entrée du point haut (47.5 m), zone que l'on nomme Z6.

Le débit massique est mesuré à l'aide d'un débitmètre à effet Coriolis.

III.3 Caractérisation thermodynamique et rhéologique du brut de l'essai.

Le brut, que l'on dénommera HK, choisi pour les essais de formation de dépôt est un mélange d'un brut fortement paraffinique nommé H et d'un solvant nommé K. Le brut HK se compose de 30 % de brut H et de 70% du solvant K. Ce mélange a été réalisé afin que l'on adapte le brut d'essai aux conditions de fonctionnement de l'installation pour le problème étudié. Nous avons veillé en particulier à obtenir un fluide suffisamment paraffinique pour générer des dépôts tout en évitant "le plus possible" les problèmes de gélification. Le détail de l'étude menée pour arriver à ce mélange ne sera pas développé dans cette thèse pour des raisons de confidentialité.

III.3.1 Analyse du brut HK par la calorimétrie différentielle à balayage (DSC) du brut.

La figure Fig-III-3 représente l'évolution de la fraction cristallisée des normales paraffine en fonction de la température. Elle est obtenue par une analyse d'un échantillon du brut HK par calorimétrie différentielle à balayage. Le mode opératoire pour obtenir cette courbe est décrit au paragraphe V.2.2.

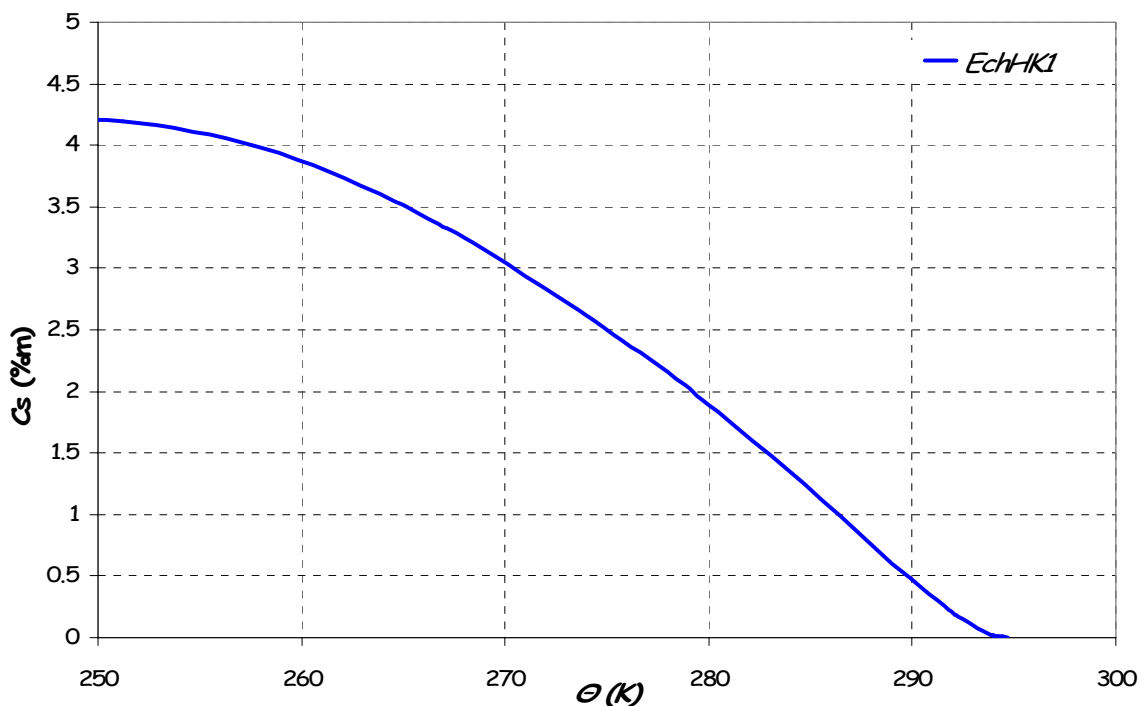


Fig- III-3: Évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines du brut HK en % masse en fonction de la température.

La température de cristallisation commençante du brut HK sur le graphe de la figure Fig-III-3 est de $\Theta_{cc} = 294.69 K$. Quand la température diminue la fraction cristallisée des normales paraffines a tendance à tendre vers une asymptote. La quantité maximale de normales paraffines dans le brut HK est de l'ordre 4.1% en masse. Ceci est cohérent avec le fait que le brut HK contient 30% du brut H qui contient approximativement 14% de normales paraffines.

III.3.2 Caractérisation rhéologique du brut.

Les mesures ont été effectuées à l'aide d'un rhéomètre Anton Paar MCR 501 équipé d'un système Peltier pour le contrôle de la température. La géométrie cône-plan a été utilisée pour avoir un cisaillement uniforme sur l'échantillon. Une chambre de régulation de température via un système Peltier dans l'entrefer est utilisée pour avoir une température uniforme dans l'échantillon et donc éviter les problèmes de dépôt dans l'entrefer.

Afin de tracer l'évolution de la viscosité apparente, μ , en fonction de la température, nous suivons le protocole d'essai représenté sur le schéma de la figure Fig-III-4.

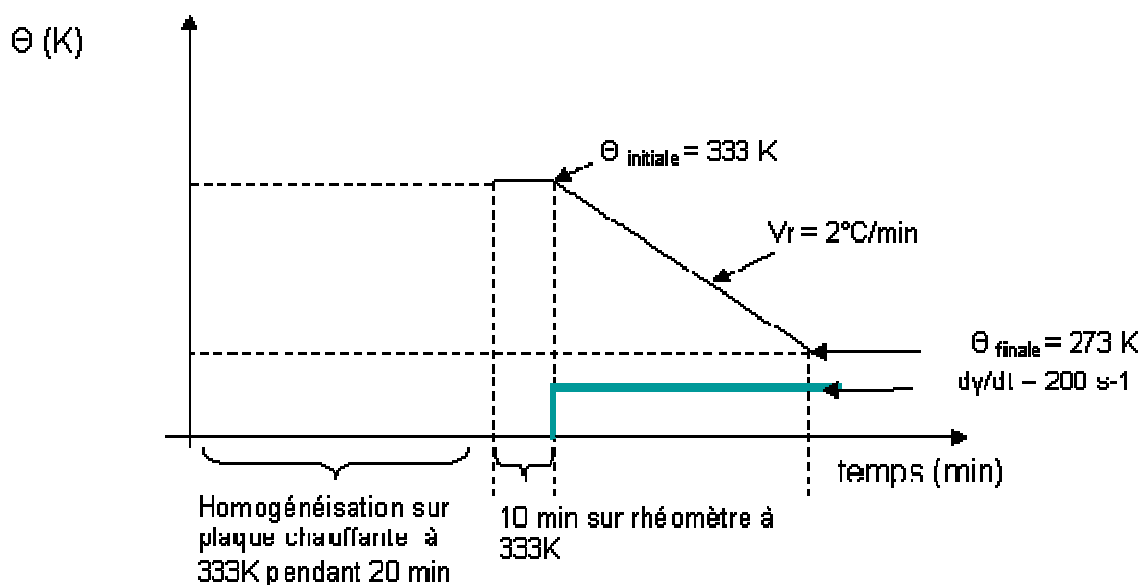


Fig- III-4: Protocole de mesure de la viscosité apparente du brut HK en fonction de la température.

L'évolution du logarithme de la viscosité apparente du brut HK en fonction de l'inverse de la température est présentée sur la figure Fig-III-5. Ce graphe peut être divisé en deux parties. Lorsque la température est supérieure à une certaine température notée $\Theta_{\text{crrhéol}}$, le brut se comporte comme un fluide Newtonien. En revanche, en dessous de cette température, la viscosité apparente du brut HK augmente de manière significative. Le brut se comporte comme un fluide non Newtonien car l'évolution de la viscosité ne suit pas une loi d'Arrhenius en fonction de l'inverse de la température. Cette augmentation est due à la température et à la précipitation des cristaux de normales paraffines. Nous relevons que la température de

cristallisation commençante déterminée par caractérisation rhéologique du brut HK $\Theta_{ccrheo} = 295K$ est identique à la température de cristallisation commençante déterminée par DSC. La viscosité newtonienne, pour $\Theta \in [295K; 333K]$, peut être représentée par une loi d'Arrhenius avec une énergie d'activation $E_a = 991.05 \times 8.35 = 8275.3 J / K$. La viscosité apparente du brut HK pour $\Theta \in [295K; 333K]$ s'écrit donc :

$$\mu = 0.0019 \times e^{\frac{E_a}{R} \left(\frac{1}{\Theta} - \frac{1}{333} \right)} \quad (III-1)$$

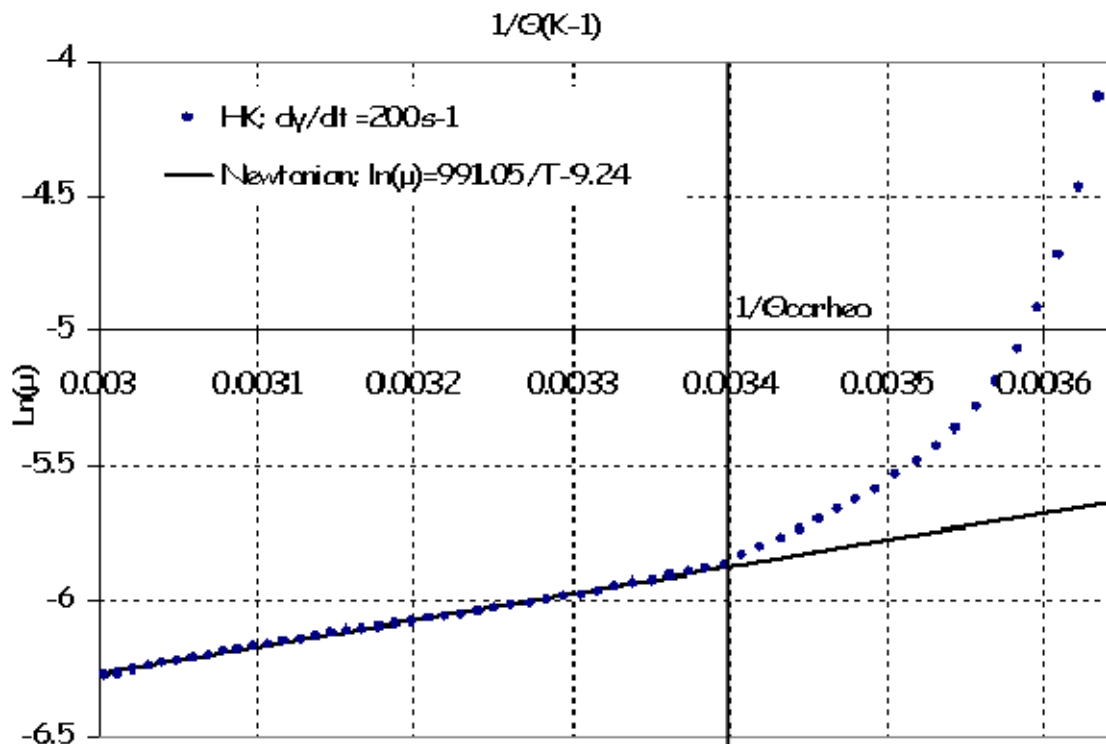


Fig- III-5:Évolution de logarithme de la viscosité du brut HK en fonction de l'inverse de la température.

III.4 Mode opératoire des essais de formation des dépôts de paraffine dans la boucle LYRE.

Les zones thermiques de la boucle LYRE utilisées pour nos tests sont les zones 1,2,3,4 et la zone paraffine,ZP, où sont créés les dépôts de paraffine (Cf. Fig-III-14). La boucle est régulée

en température de manière homogène (supérieure à la Θ_{cc}) pour toutes les zones, exceptée la zone ZP qui est à une température inférieure à Θ_{cc} afin que la manchette paraffine soit le lieu privilégié de la formation de dépôt de paraffines. Les températures cibles, pour chaque zone, sont indiquées dans le tableau III-1. Le débit du brut HK est maintenu constant à l'aide du by-pass de recirculation de la pompe P1. Dans un premier temps, la manchette paraffine est en mode by-pass (le brut passe dans la zone 4 au lieu de la zone paraffines). La température de la zone ZP est abaissée jusqu'à la température cible de manière rapide. Lorsque la température cible est atteinte, les vannes permettant d'éviter la zone 4 sont activées de façon à ce que le fluide passe par la manchette paraffine, ZP. Le temps t_0 est pris à ce moment-là. La construction du dépôt est suivie à l'aide des thermocouples disposés sur la manchette paraffine : TT14, TT15, TT16 et TT17 et de la mesure de la perte de charge via le capteur différentiel de pression PDT5 (Cf. Fig-III-15). Les conditions ci dessus sont maintenues pendant la durée indiquée dans le tableau III-1. Une fois formé, le dépôt est récupéré pour être pesé. Ceci nous permet de comparer la quantité de dépôt formé à différents instants. La récupération du dépôt formé dans la manchette à paraffine se fait en suivant les étapes décrites ci-après, sans modifier les consignes de température sur les différentes zones :

- Arrêt de la pompe P1. Fermeture de la vanne HEV8.
- Pressurisation en azote jusqu'à une pression suffisante pour utiliser le compresseur K1 (40 bars sur V1+ conduite).
- Démarrage du compresseur K1.
- Imposition d'un débit de gaz minimal à une température de 293 K de façon à chasser tout le liquide contenu dans la boucle, le dépôt ne doit pas être arraché par cette opération.
- Isolation de la zone paraffine.
- Dépressurisation de la zone paraffine.
- Démontage de la manchette paraffine.
- Observation et récupération du dépôt de paraffine avec racleur + pesée + photo.
- Remontage de la manchette à paraffine.
- Ouverture et pressurisation à 40 bar de la zone ZP pour vérifier l'étanchéité
- Fusion du dépôt.
- Poursuite de la matrice d'essai.

Nom du test	Débit volumique (m ³ /h)	Θ: Z1,Z2,Z3,Z4 (K)	Θ Cible en ZP (K)	Durée du test (h)	Actions durant le test
Test-72h-283K	5	293	283	72	Raclage du dépôt à la fin du test
Test-24h-283K	5	293	283	24	observation dépôt à t = 4 h. Raclage du dépôt à l'issue du test.
Test-72h-275K	5	293	275	72	observation dépôt à t = 24 h. Raclage du dépôt à l'issue du test.

Tableau III-1: Matrice des essais.

Pour des raisons d'optimisation du temps des essais, nous avons commencé par l'essai qui dure 72 heures avec une température de paroi de 283 K puis nous avons poursuivi avec l'essai qui dure 24 heures avec la même température de paroi. Pour finir nous avons effectué le dernier essai avec une température de paroi de 275 K et pour une durée de 72 h.

III.5 Détermination de l'évolution temporelle de l'épaisseur du dépôt en utilisant la perte de charge:

Initialement le brut HK s'écoule dans la boucle LYRE à une température de 293K. Selon les mesures ci dessus, la viscosité de l'huile à cette température est de l'ordre de 0.003 Pa.s. Le calcul du nombre de Reynolds indique que le régime d'écoulement est pleinement turbulent.

$$R_e = \frac{4 \cdot \rho}{\pi \mu D} \cdot Q = 10300 \quad (\text{III-2})$$

Lorsque le dépôt de paraffine se construit dans la manchette paraffine, une augmentation de la perte de charge est observée. Cette augmentation peut être interprétée comme étant la conséquence de la réduction de la section et de l'augmentation de la viscosité due à la diminution de la température.

Calculons la relation entre la perte de charge et l'épaisseur du dépôt selon le régime d'écoulement.

Dans un premier temps, nous faisons l'hypothèse que notre conduite est lisse, nous utilisons donc la corrélation de Blasius pour déterminer le coefficient de frottement, f , valable pour un écoulement turbulent dans une conduite lisse:

$$f = 0.079 \times R_e^{-\frac{1}{4}} \quad (\text{III-3})$$

D'autre part, la loi analytique de la perte de charge en fonction du débit s'écrit comme suit:

$$\frac{\Delta P}{L} = \frac{32 \rho f}{\pi^2 D^5} \times Q^2 \quad (\text{III-4})$$

Notons ΔP_0 la perte de charge initiale dans la manchette paraffine, avant la formation du dépôt de cire. L'augmentation de cette perte de charge est essentiellement due à la formation du dépôt de paraffine, causée par la diminution de la température de paroi en dessous de Θ_{cc} , qui réduit le diamètre de la conduite. La longueur de la dérivation paraffine est telle que le fluide "process" n'a pas le temps d'être refroidi de manière significative "à coeur" et donc la variation de la viscosité due à la température est négligeable.

Évaluant le rapport des pertes de charge $\frac{\Delta P}{\Delta P_0}$ en considérant que la masse volumique ne varie

pas avec la température (au même titre que la viscosité) :

$$\frac{\Delta P}{\Delta P_0} = \left(\frac{D_0}{D_0 - 2e} \right)^5 \times \frac{f}{f_0} = \left(\frac{D_0}{D_0 - 2e} \right)^5 \times \left(\frac{D_0}{D_0 - 2e} \right)^{-\frac{1}{4}} = \left(1 - \frac{2e}{D_0} \right)^{-\frac{19}{4}} \quad (\text{III-5})$$

On en déduit l'évolution de l'épaisseur du dépôt de paraffine en fonction de la variation de la chute de pression :

$$e = \frac{D_0}{2} \left[1 - \left(\frac{\Delta P}{\Delta P_0} \right)^{-\frac{4}{19}} \right] \quad (\text{III-6})$$

En mesurant la perte de charge initiale ainsi que la variation de la perte de charge dans la manchette paraffine en fonction du temps, nous pourrions déterminer l'évolution de l'épaisseur moyenne du dépôt de paraffine en fonction du temps.

Si le régime d'écoulement est laminaire, le coefficient de friction sera égale à, $f = \frac{16}{R_e}$, on obtiendra donc :

$$e = \frac{D_0}{2} \left[1 - \left(\frac{\Delta P}{\Delta P_0} \right)^{-\frac{1}{4}} \right] \quad (\text{III-7})$$

Constatons que, à accroissement de pertes de charge équivalent, l'épaisseur de dépôt résultante est plus importante en laminaire qu'en turbulent.

Cette méthode est intéressante car elle permet de suivre la construction du dépôt de paraffine au cours du temps. Cependant le dépôt est considéré uniformément réparti à la fois axialement sur huit mètres et radialement.

III.6 Résultats et discussions.

III.6.1 Observation et pesée des dépôts de paraffines récupérés dans la manchette à paraffine.

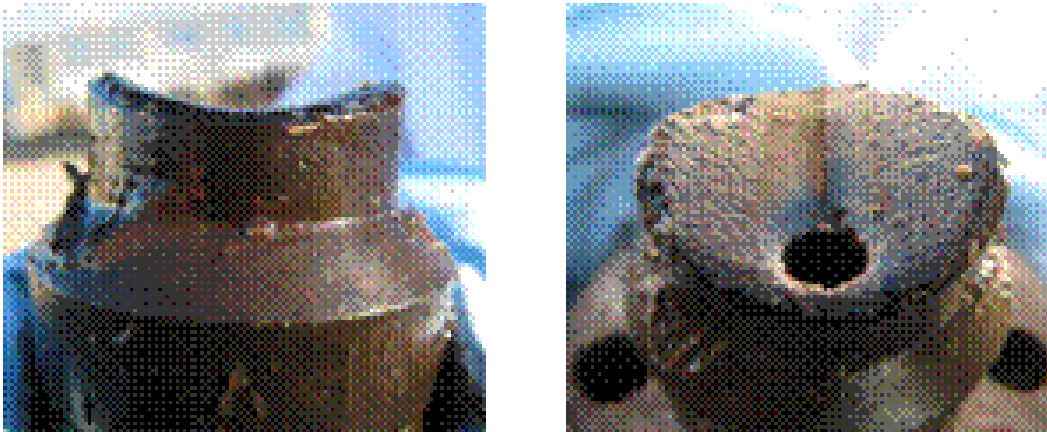


Fig- III-6: Dépôt de paraffine formé au bout de 4 heures d'écoulement dans la manchette à paraffine durant le test-24h-283K.

Les photos présentées sur la figure Fig-III-6 montrent qu'un dépôt de paraffine s'est formé au bout de quatre heures d'écoulement, avec la température de paroi de la conduite à 283 K.

L'épaisseur de ce dépôt est approximativement de 1 mm. Sa surface est lisse. Il a un aspect plutôt mou. Nous constatons également que ce dépôt se décolle de la paroi assez facilement.

Le dépôt formé au bout de 24 heures avec une paroi de la conduite à 283 K a une épaisseur de l'ordre de 1,5 mm (Cf. Fig-III-7 à droite). Il a un aspect mou également. Celui ci croît lors de l'essai de 72 heures à 283 K (Cf. Fig-III-8 à droite) jusqu'à atteindre une épaisseur de l'ordre de 2 mm. Il a toujours un aspect mou.

Le dépôt obtenu à 275 K au bout de 24 heures a une épaisseur de l'ordre de 2 mm (Cf. Fig-III-7 à gauche). Sur la figure III-8 à gauche, on constate qu'il a légèrement évolué pour atteindre une épaisseur de l'ordre de 2,3 mm au bout de 72 heures toujours à 275K. Son aspect paraît plus sec que les autres dépôts. Quelque soit l'essai, nous constatons que les dépôts obtenus sont relativement homogènes radialement (Cf. Fig-III-7). Cela signifie que l'effet de la gravité sur la formation du dépôt est négligeable conformément aux conclusions énoncées dans la littérature.

Les dépôts récoltés à 283 K au bout de 24 heures et 72 heures et le dépôt obtenu au bout de 72 heures à une température de 275 K sont un mélange du brut et des cristaux de normales paraffines (Cf. Fig-III-9). Nous avons constaté visuellement que le dépôt récupéré au bout de 24 heures à 283 K est moins "consistant" que celui récupéré au bout de 72 heures à 283 K qui est à son tour moins "consistant" que le dépôt obtenu au bout de 72 h à 275 K ce qui légitime l'idée d'un appauvrissement progressif du dépôt en huile.

La masse des dépôts récoltés à la fin de chaque test est rapportée dans le tableau III-2.

En faisant un calcul approché avec les hypothèses que la densité du dépôt est de 900 kg/m³ et que ce dépôt est uniformément réparti sur toute la circonférence, on peut avoir une idée de l'épaisseur de ce dépôt. Cette méthode présente l'avantage d'être une mesure moyenne et représentative de conditions hydrodynamiques et thermiques établies.

L'épaisseur du dépôt est déduite de la masse récoltée via l'équation ci dessous:

$$m_d = \rho_p \times (\pi \cdot \frac{D^2}{4} - \pi R_d^2) \times L \Rightarrow e = \frac{D}{2} - \sqrt{\frac{D^2}{4} - \frac{m_d}{\rho_p \times \pi \times L}} \quad (III-8)$$

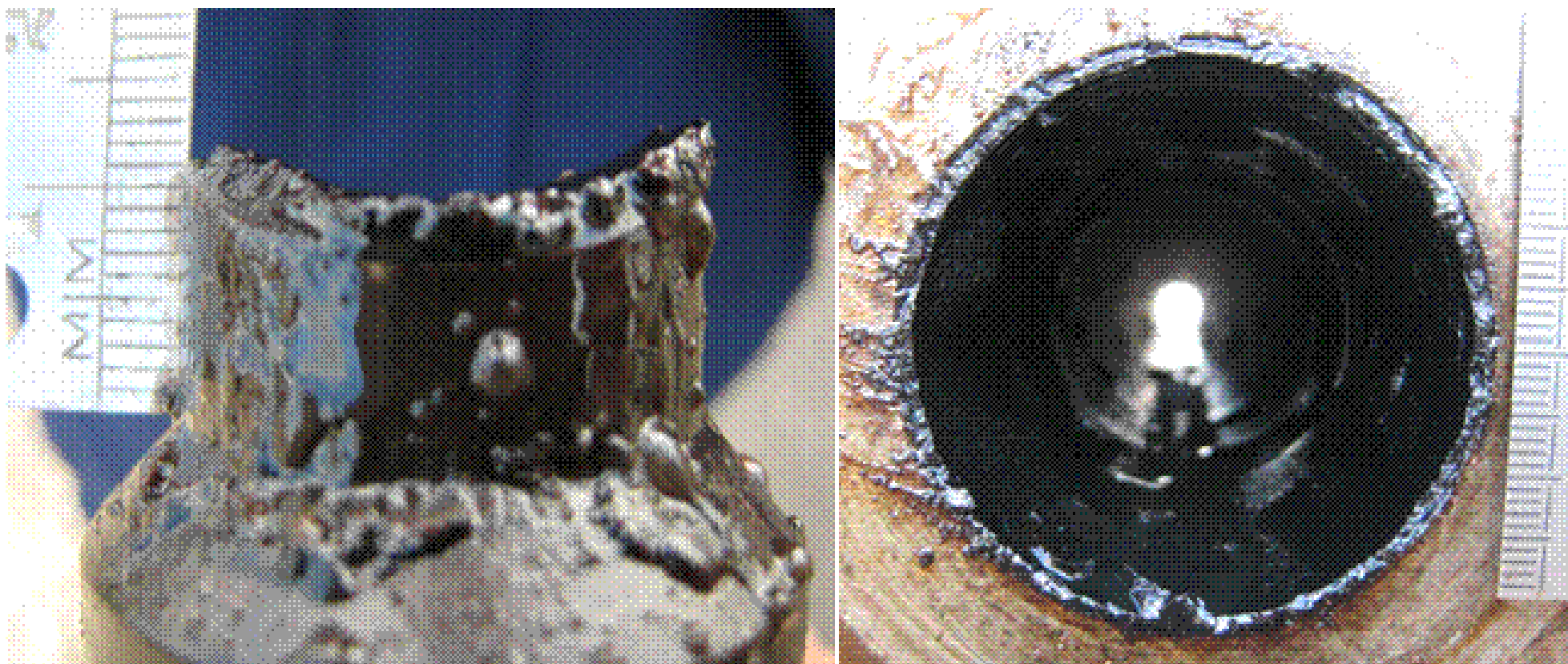


Fig- III-7: Dépôts de paraffine obtenus: à gauche au bout de 24 heures à une température de 275 K , à droite au bout de 24 heures à une température de 283 K.

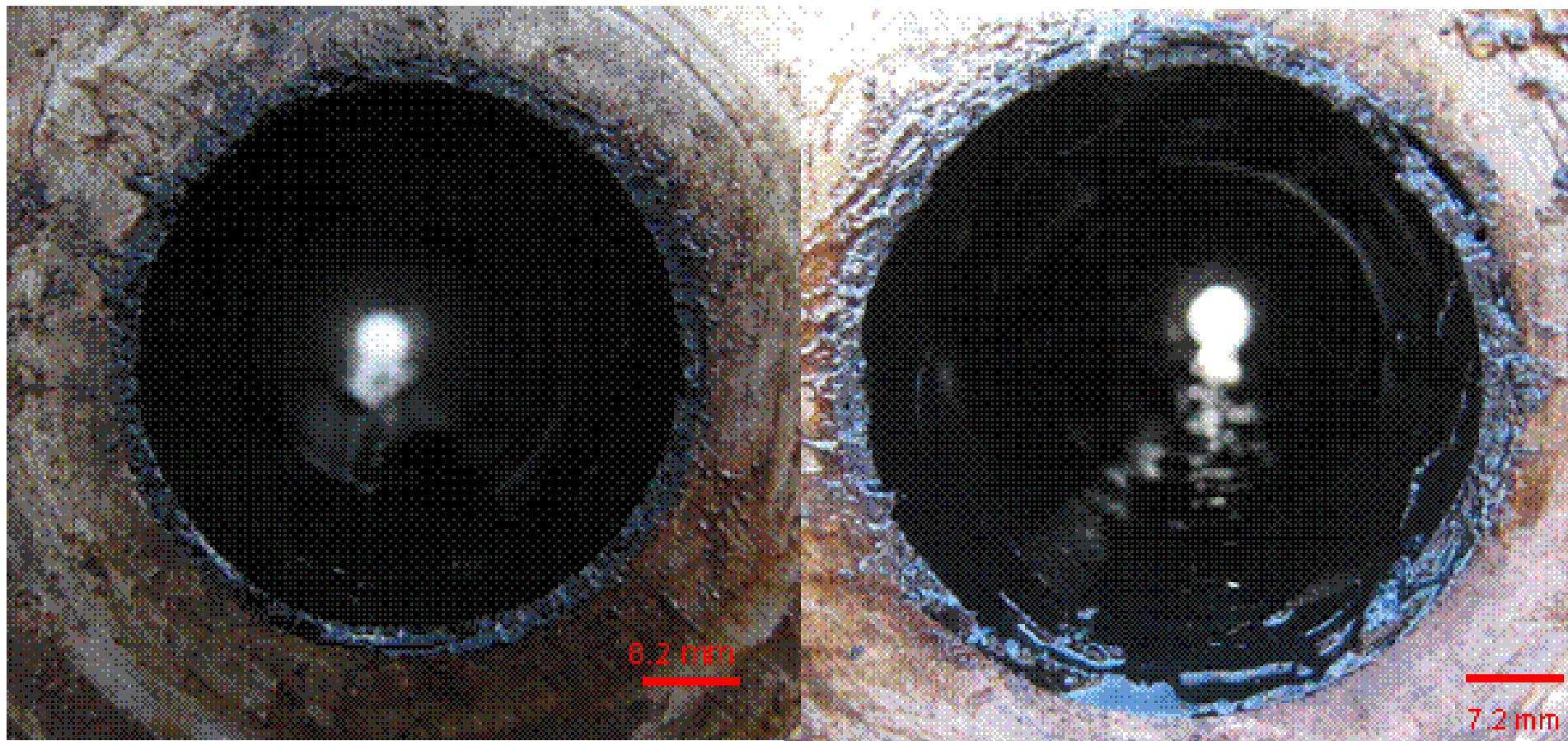


Fig- III-8: Dépôts de paraffine obtenus: à gauche au bout de 72 heures à une température de 275 K , à droite au bout de 72 heures à une température de 283 K.

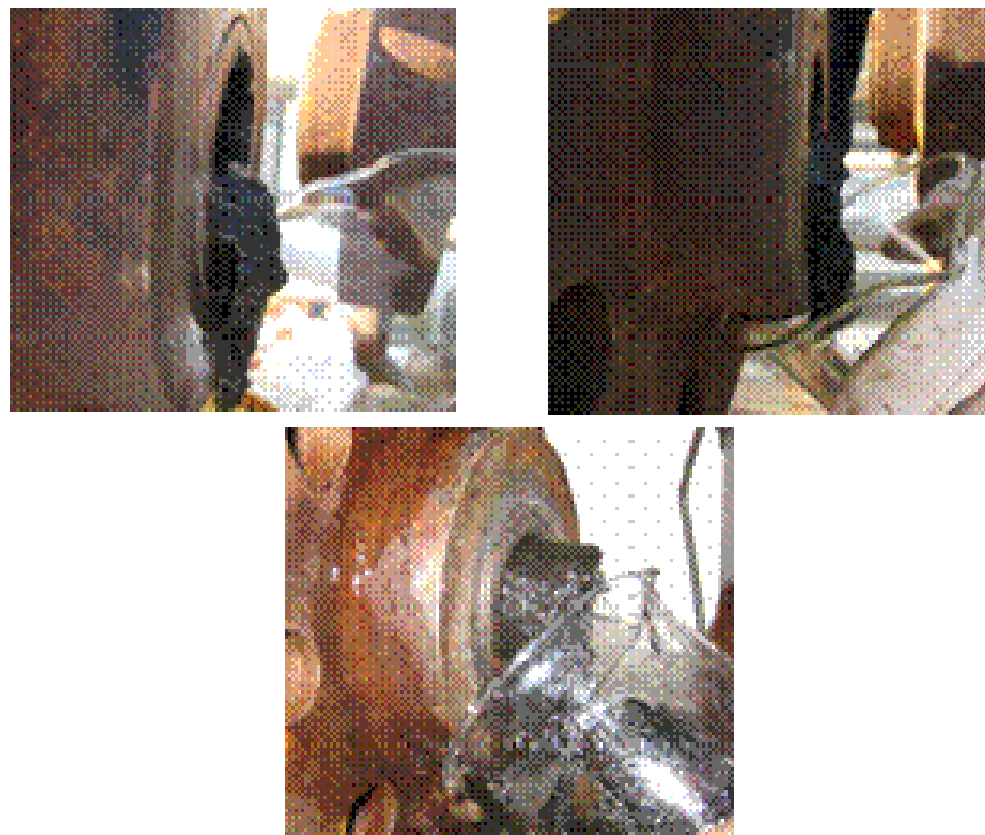


Fig- III-9:Récupération du dépôt obtenu à gauche :au bout de 24 heures à une température de 283 K , à droite : au bout de 72 heures à une température de 283 K et en bas : au bout de 72 h à une température de 275 K.

Les masses récoltées (Cf. Tableau-III-2) montrent d'une part que pour une même durée d'essai, plus le gradient de température est important plus la quantité de paraffine déposée est importante. D'autre part, pour un même gradient thermique, la quantité du dépôt déposée croît avec le temps. Les ordres de grandeur des épaisseurs calculées à partir des masses récoltées sont présentés dans le tableau III-2. Conformément aux observations visuelles, l'épaisseur du dépôt calculée lors du test-24h-275K est plus importante que celle calculée lors du test-72h-283K qui est plus importante que celle du dépôt calculée au test-24-283K. En revanche les valeurs calculées sont légèrement différentes des observations visuelles.

Nom du test	masse raclée (kg)	ed (mm)
Test-72h-283K	0,18	1,3
Test-24h-283K	0,13	0,9
Test-72h-275K	0,25	1,8

Tableau III-2: Masse des dépôts récoltés et les épaisseurs calculées via (III-8).

III.6.2 Évolution temporelle du dépôt de paraffine.

Les courbes rouge et bleue de la figure Fig-III-10 représentent respectivement l'évolution temporelle des pertes de charge linéiques dans la section Z_3 et dans la manchette paraffine pour le test "test-72h-275K" sur 24 heures. La température est homogène dans toute la section Z_3 et est supérieure à la température de cristallisation commençante. En conséquence, nous sommes en présence d'un écoulement newtonien incompressible et isotherme dans cette zone. De plus, cette section ne voit pas la construction du dépôt de paraffine dans la manchette paraffine et les pertes de charges linéiques sont constantes au cours du temps et égales à 2 mbar/m (Courbe rouge de la Fig-III-10). En revanche, on constate sur la courbe bleue de la figure Fig-III-10 que les pertes de charges linéiques dans la manchette paraffine sont égales à 2 mbar/m initialement et augmentent significativement au cours du temps. Ceci montre qu'il y

a formation d'un dépôt de paraffine dans ZP. Cette courbe se divise en trois parties distinctes. Durant la première demi-heure, les pertes de charge linéiques dans la manchette restent en moyenne constantes au voisinage de 2mbar/m, le dépôt de paraffine n'est probablement pas encore construit. Dans l'intervalle de temps compris entre une demi-heure et dix heures, une augmentation de la perte de charge apparaît de manière progressive. Il est donc fort probable que le dépôt se construit pour atteindre une épaisseur moyenne, e_{d0} . La troisième partie de la courbe comprise entre dix heures et vingt quatre heures montre qu'en moyenne les pertes de charge augmentent très lentement voire restent constantes au voisinage de 2,6 mbar/m. Il se pourrait qu'on ait atteint une épaisseur limite. Deux phénomènes différents peuvent expliquer ce ralentissement de croissance du dépôt de paraffine. En effet, le dépôt de paraffine joue le rôle d'un isolant thermique et lorsqu'on atteint une épaisseur suffisante le gradient de température dans le pipeline est fortement diminué et donc la croissance du dépôt est fortement diminuée également. Le deuxième phénomène est probablement lié à l'augmentation de la contrainte du cisaillement au voisinage du dépôt due à la diminution de la section du pipeline.

Nous retrouvons les mêmes tendances des courbes pour le test "test-24h-283K" sur les dix premières heures. En revanche pour le test "test-72-283K" la mesure de la perte de charge est complètement inexploitable.

L'équation (III-6) établie dans le paragraphe (III-5), nous permet de tracer l'évolution de l'épaisseur moyenne du dépôt de paraffine dans la manchette à paraffine à partir de la perte de charge. Cette évolution est représentée sur la figure Fig-III-11. Nous choisissons les pertes de charge linéique initiales égales à $\frac{\Delta P_0}{L} = 2 \text{ mbar} / \text{m}$ correspondantes aux pertes de charge linéiques quand il y a absence du dépôt.

Sur les graphes de la figure III-11, nous retrouvons les remarques précédentes faites sur l'évolution des pertes de charges. Nous retrouvons également les tendances qualitatives observées visuellement et par pesée sur les épaisseurs des dépôts. Nous mettons en évidence que, lorsque la température de la paroi est à 283 K, un dépôt de paraffine commence à se créer au bout de deux heures puis il croît avec le temps de manière progressive. Au bout de cinq heures, la croissance du dépôt ralentit considérablement jusqu'à atteindre une épaisseur limite. En revanche lorsque la température de la paroi est à 275 K, le dépôt se crée dès la première

deux heures pour atteindre une épaisseur limite au bout de dix heures. L'épaisseur obtenue à 275 K est plus grande que celle obtenue à 283 K

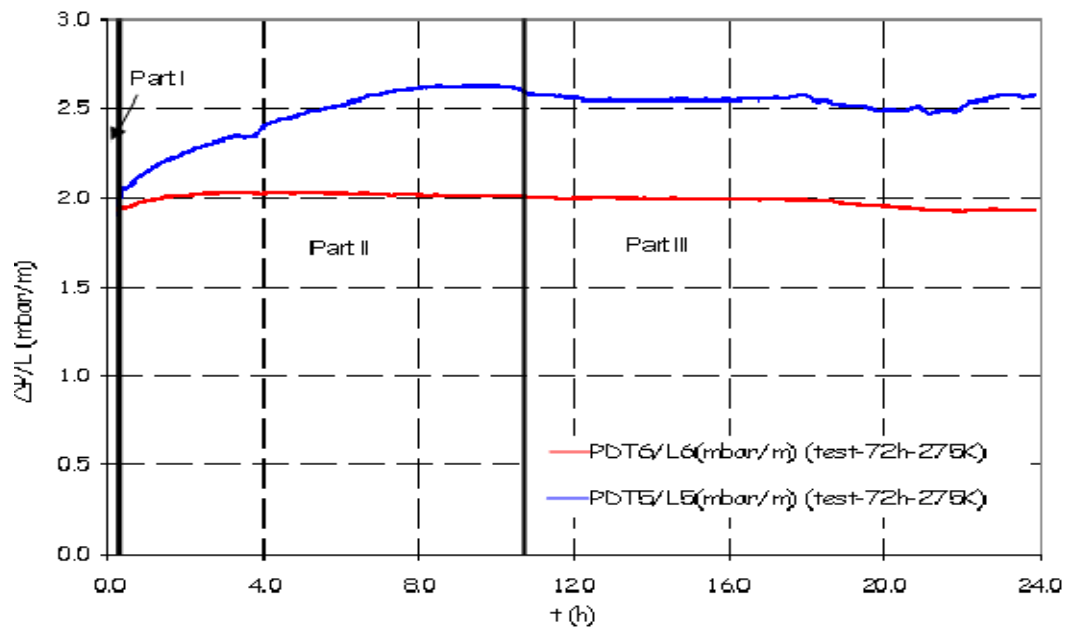


Fig- III-10:Évolution temporelle de la valeur moyenne des pertes de charge linéiques mesurées par PDT5 et PDT6 pour le test "test-72h-275K" sur 24 heures.

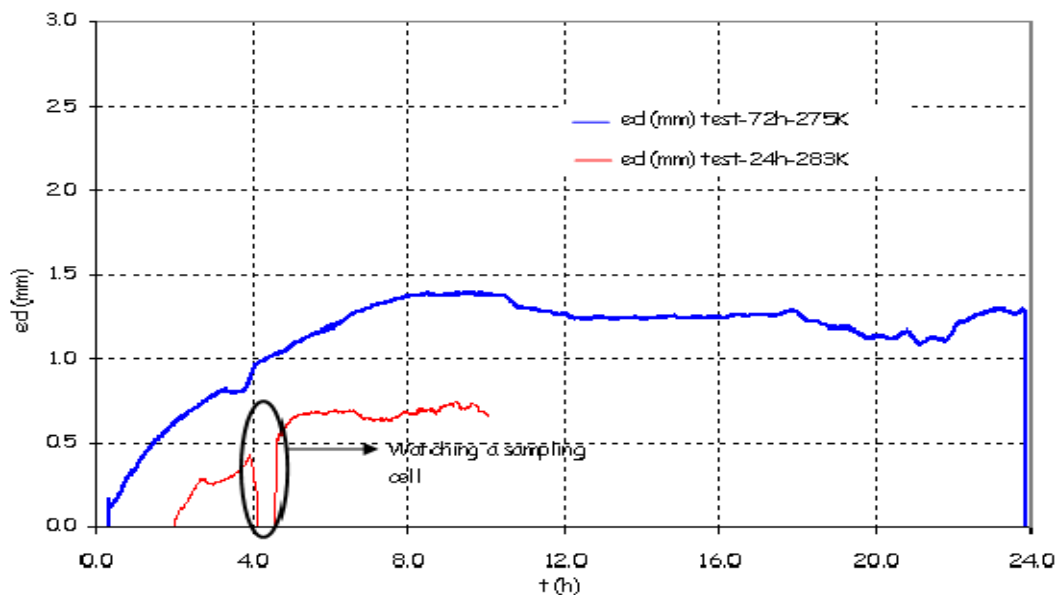


Fig- III-11: Influence du gradient de température sur l'épaisseur du dépôt.

Le tableau III-3 récapitule les épaisseurs obtenues par les trois méthodes détaillées ci dessus. Nous retrouvons les mêmes ordres de grandeurs pour les épaisseurs par les trois méthodes. En revanche, il faut souligner que l'observation visuelle montre une croissance lente du dépôt entre 24h et 72h ce qui n'est pas corroboré par les mesures de pertes de charges.

	e_d pesée (mm)	e_d observations (mm)	e_d pertes de charge (mm)
test-72h-275K	1,8 (au bout de 72 h)	2 (au bout de 24 h) 2,3 (au bout de 72 h)	1,3 (au bout de 24 h)
test-72h-283K	1,3 (au bout de 72 h)	2 (au bout de 72 h)	Signal inexploitable
test-24h-283K	0,9 (au bout de 24 h)	1 (au bout de 4 h) 1,5 (au bout de 24 h)	0,4 (au bout de 4 h) 0,6 (au bout de 10 h)

Tableau III-3:Épaisseurs du dépôt obtenues par trois méthodes différentes.

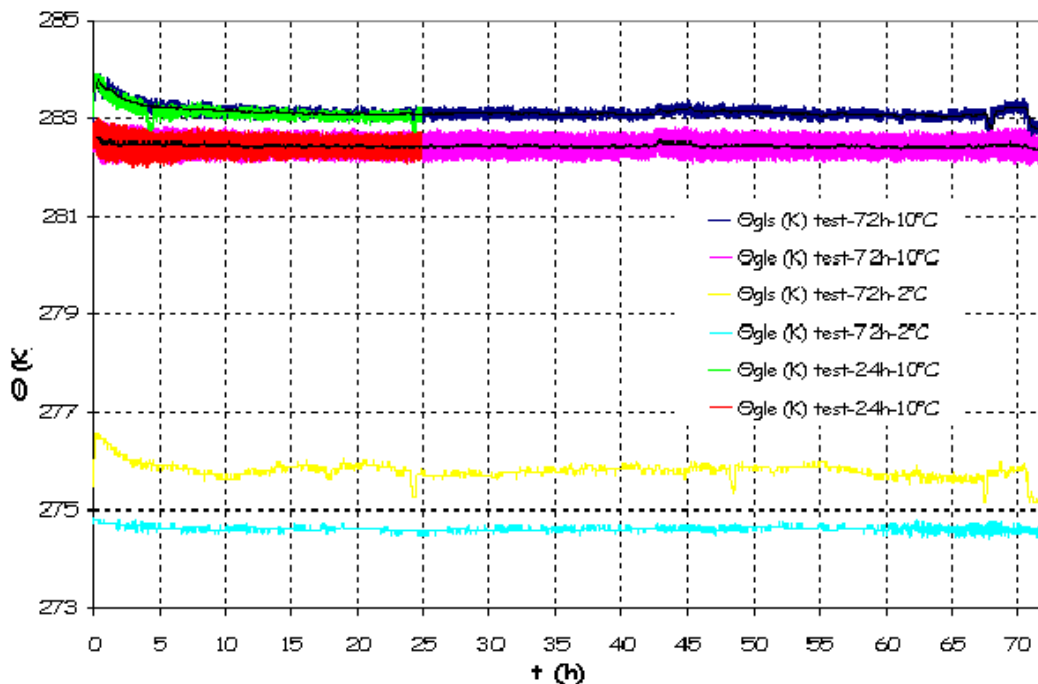


Fig- III-12:Évolution temporelle de la température moyenne de l'eau glycolée à l'entrée et à la sortie de l'échangeur pour tous les tests.

La figure III-12 représente l'évolution temporelle de la température moyenne de l'eau glycolée à l'entrée et à la sortie de l'échangeur (double enveloppe) monté sur la manchette à paraffine à

contre sens pour les trois tests. Nous constatons de manière générale, que l'évolution de la température de l'eau glycolée à la sortie de la manchette décroît sur quelques heures jusqu'à atteindre une température d'équilibre. En d'autres termes, le flux de chaleur fournit par le brut chaud à l'eau glycolée est plus important au début du test qu'au cours du test sachant que le brut entre dans la manchette à paraffine à une température constante de 293 K. Nous imaginons que lors de la formation du dépôt, celui ci joue le rôle d'un isolant thermique. D'ailleurs, nous atteignons une température d'équilibre pour l'eau glycolée à la sortie de l'échangeur au bout de dix heures pour le test "test-72h-275K" et au bout de cinq heures pour le test "test-24h-283K". Ces temps correspondent à la durée qu'il a fallu pour atteindre des épaisseurs de dépôt constantes. Nous constatons également sur les vingt quatre premières heures que les températures moyennes de sortie du l'eau glycolée pour le test "test-72h-283K" et le test "test-24h-283K" réagissent pareillement. Cela signifie qu'on a une reproductibilité des tests.

III.6.3 Analyse par DSC des dépôts de paraffine récupérés.

Une analyse par DSC des dépôts de paraffine prélevés au cours des essais a été réalisée. Le protocole de la mesure de DSC utilisé pour avoir ces courbes est identique à celui du paragraphe III-3-1. Les courbes rouge, bleue et rose de la Fig-III-13 représentent respectivement l'évolution de la quantité de cristaux de dépôt de paraffine en fonction de la température pour le brut HK, le dépôt de paraffine obtenu au bout de 72 heures lors du test "test_72h_275K", qu'on nommera D1 et le dépôt de paraffine obtenu au bout de 24 heures lors du test "test_24h_283K" qu'on nommera D2.

Il est incontestable que D1 et D2 sont beaucoup plus riches en cristaux de paraffines que le brut HK puisque D1 et D2 contiennent respectivement 44,1% et 26,5% de cristaux de paraffine soit respectivement 10 et 6 fois plus que le brut HK. Ces constatations confortent les observations visuelles faites précédemment à savoir que D1 est plus consistant que D2. La cristallisation des normales paraffines présentes naturellement près de la paroi de la conduite ne suffit pas pour expliquer cette augmentation en normales paraffines dans les dépôts récupérés. Une explication probable est que la diffusion moléculaire joue le rôle d'un mécanisme d'enrichissement en normales paraffines près de la paroi. En effet, comme

expliqué dans le paragraphe II-2, un déficit de concentration en normales paraffines dissoutes radiale est créé du fait de la cristallisation des premières paraffines près de la paroi.

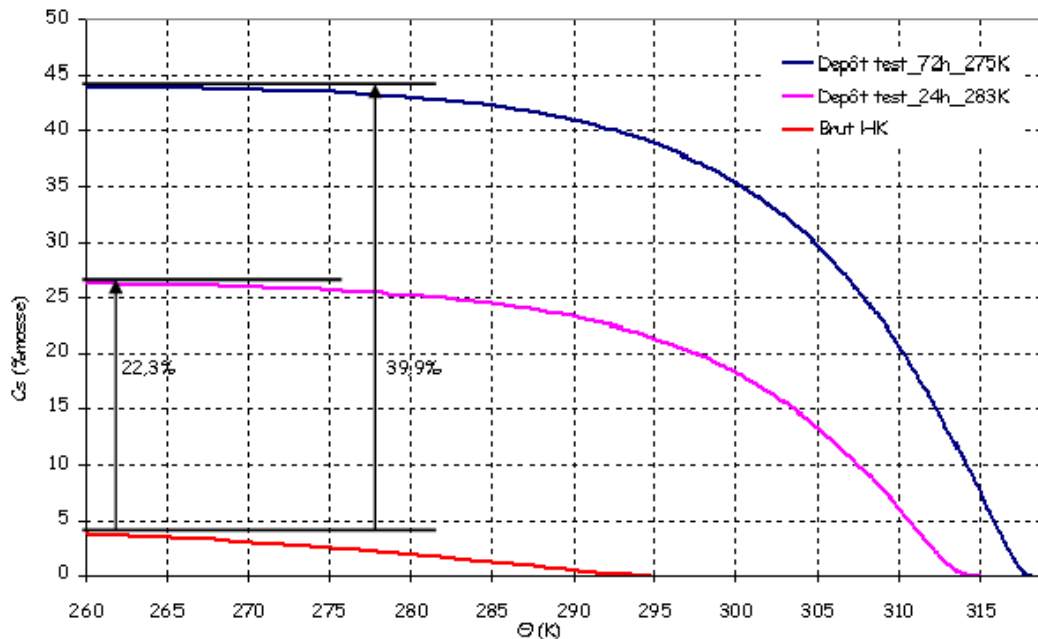


Fig- III-13: Fraction de cristaux de paraffine dans les dépôts obtenus lors des tests test_72h_275K en bleu et test_24h_283K en rose. En rouge , c'est les cristaux de paraffine présents dans le brut HK.

III.6.4 Analyse rhéologique du dépôt de paraffine récupéré lors du test "test_72h_283K".

Dans cette partie, nous voulons étudier le comportement rhéologique d'un dépôt de paraffine récupéré lors de l'essai "test_72h_283K". Le dépôt étant trop plastique, pour établir sa courbe d'écoulement, nous avons choisi de le "diluer" dans le brut HK. Pour ce faire, nous avons fabriqué un échantillon nommé "40%Dépôt-60%HK" constitué de 40% de dépôt de paraffine et de 60% de brut HK. Cet échantillon pourrait être vu comme un dépôt récupéré plus tôt que le dépôt final, mais cela ne change rien au raisonnement qui va suivre.

Les protocoles de la fabrication de l'échantillon et de l'obtention de sa courbe d'écoulement à 283K de l'échantillon "40%Dépôt-60%" seront détaillés dans le chapitre V paragraphes V-2-1 et V-2-3.

Les courbes de la figure Fig-III-14 représentent les courbes d'écoulement du brut HK et de l'échantillon "40%Dépôt-60%" ainsi que les corrélations de Bingham qui y correspondent à 283K. Nous constatons que, à 283K, le brut HK et l'échantillon "40%Dépôt-60%" se comportent respectivement comme un fluide newtonien et un fluide à seuil. Par ailleurs la viscosité du brut HK est 23 fois plus petite que la viscosité plastique de l'échantillon "40%Dépôt-60%". Cette dernière constatation nous amène à penser que le dépôt de paraffine résulte probablement d'une couche près de la paroi de la conduite qui ne s'écoule pas et qui se comporte comme un matériau viscoplastique dont la contrainte seuil et la viscosité plastique varient en fonction de la quantité de cristaux de paraffine qui le compose.

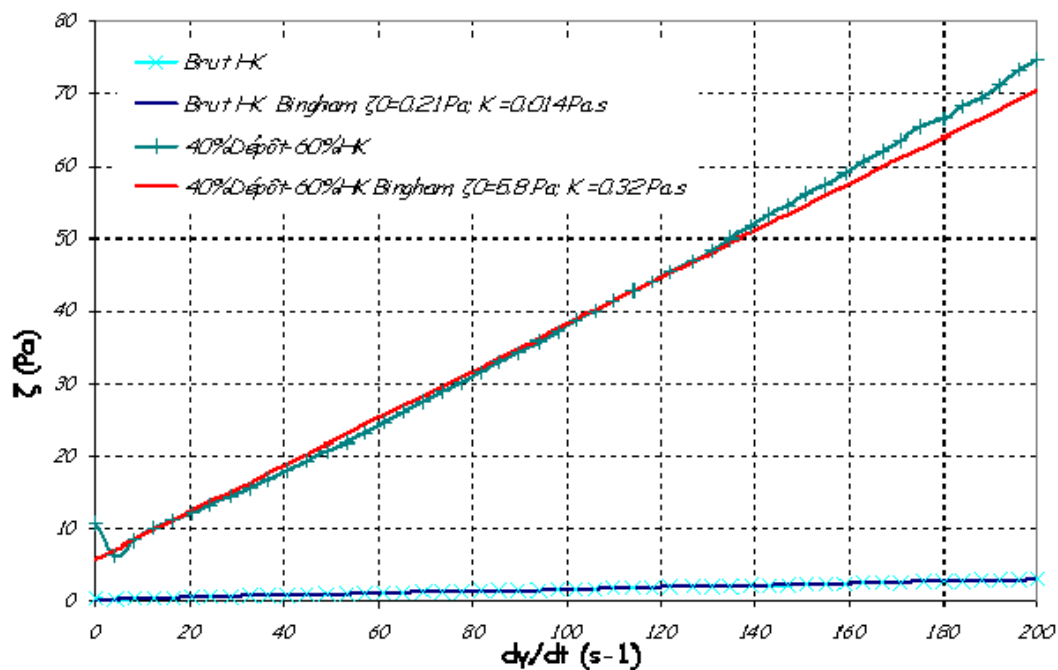


Fig- III-14: Courbes d'écoulement du brut HK et de l'échantillon "40%Dépôt-60%HK" à 283K.

III.7 Conclusions

Nous avons mené des essais de dépôt de paraffine dans une boucle d'essai semi industrielle (Boucle LYRE) à l'IFP Lyon. Deux gradients de températures différents ont été imposés. Le dépôt de paraffine a été analysé à différents instants.

Ces essais nous ont permis de tirer quelques conclusions concernant la formation du dépôt et ces caractéristiques:

- Quelques soit l'essai, le dépôt de paraffine n'apparaît pas immédiatement. Plus le gradient de température est important, plus tôt le dépôt apparaît.
- Le dépôt de paraffine est constitué de cristaux de paraffine mais également d'huile.
- L'épaisseur et la nature du dépôt dépendent du gradient de température et du temps.
- Le dépôt de paraffine ne colle pas à la paroi de la conduite.
- Le dépôt de paraffine est probablement enrichi en cristaux de paraffine via le mécanisme de diffusion moléculaire.
- Le dépôt se comporte comme un matériau viscoplastique dont la contrainte seuil et la viscosité plastique varient en fonction de la quantité de cristaux de paraffine.
- Le rôle de la gravité sur la formation du dépôt de paraffine est négligeable.
- Le dépôt de paraffine joue le rôle d'un isolant thermique durant sa formation.

Ces observations expérimentales montrent bien que la formation du dépôt et sa nature dépendent du gradient de température et du temps, mais montrent aussi que les modèles existants peuvent être améliorés en tenant compte de l'évolution de la rhéologie de la couche près de la paroi du à l'enrichissement local en cristaux de paraffine. La diffusion moléculaire joue le rôle d'un mécanisme d'enrichissement qui alimente cette couche en paraffines dissoutes. Ainsi, l'approche phénoménologique proposée dans le paragraphe II-5 en quatre étapes est probablement proche de ce qui pourrait se passer dans un pipeline.

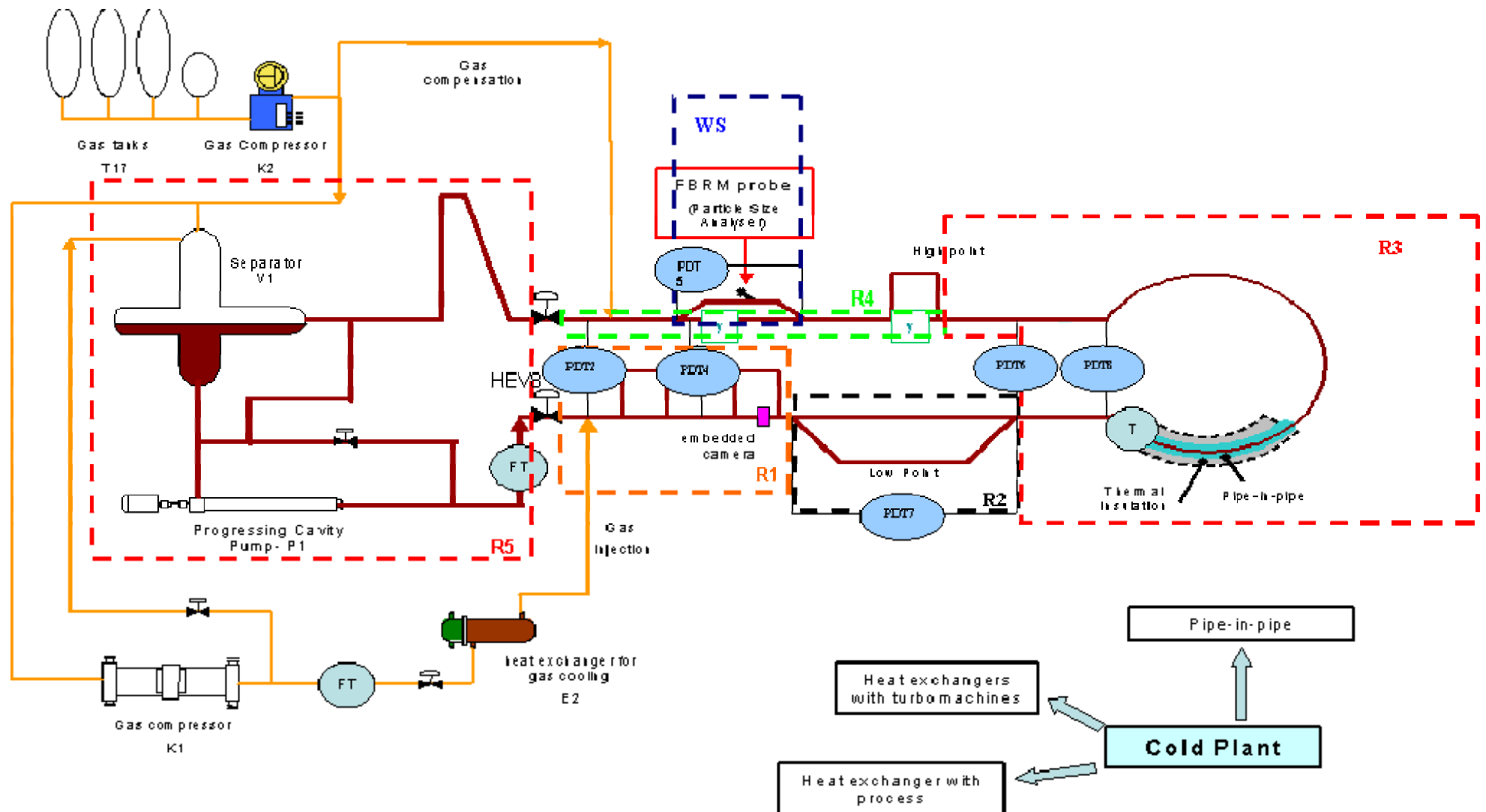


Fig- III-15:Schéma de principe de la boucle LYRE avec les différentes zones.

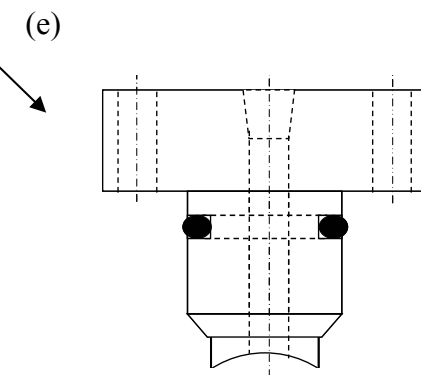
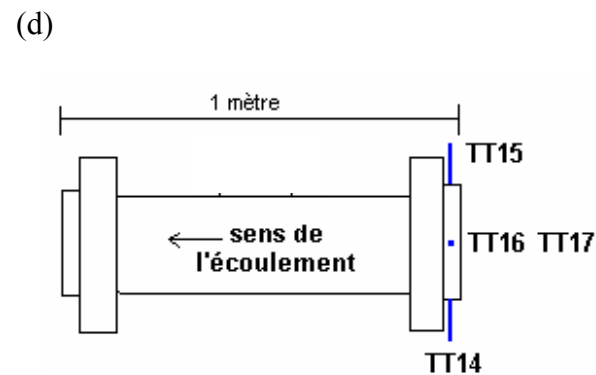
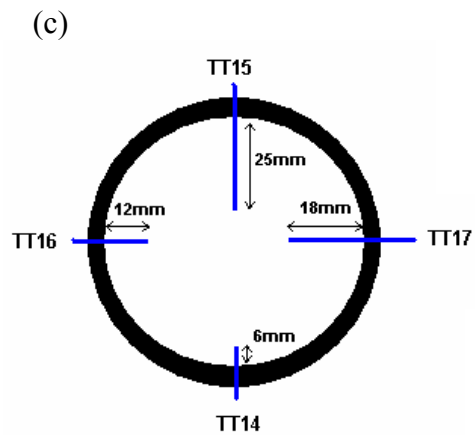
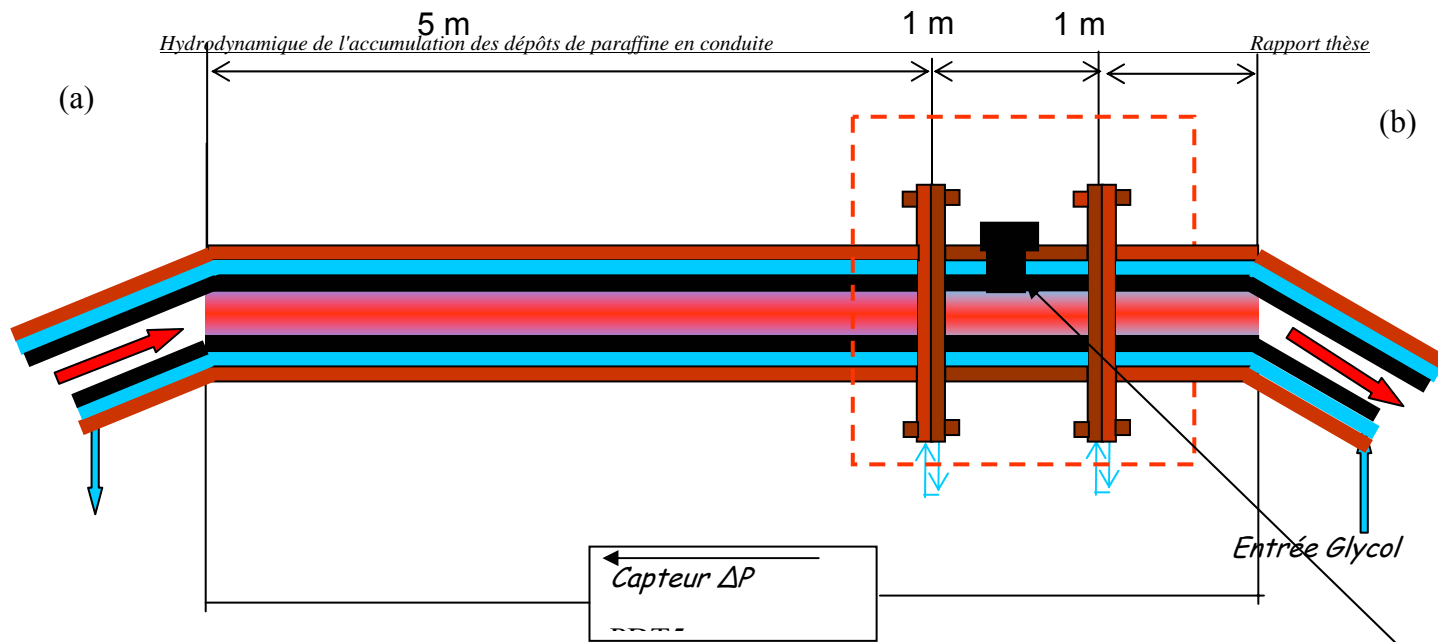


Fig- III-16:(a) Schéma de principe de la manchette paraffine, (b) photo de la manchette paraffine, (c) et (d) positions des capteurs de température dans la section démontable et (e) cellule "témoin".

CHAPITRE IV: MODÈLE THERMOMÉCANIQUE DES DÉPÔTS DE PARAFFINES ET RÉSOLUTION NUMÉRIQUE.

IV.1 Introduction

Dans un premier temps, les équations qui régissent l'écoulement d'un fluide viscoplastique associé à un enrichissement local en particules paraffiniques sont décrites. La géométrie du problème ainsi que les conditions initiales et aux limites sont ensuite précisées. Nous nous intéressons à la résolution numérique de ces équations. Nous utilisons le code Starwacs2D développé par G. Vinay, 2005 comme structure de base et nous l'adaptions à notre problématique. Nous portons un intérêt particulier à l'implémentation de la loi de comportement du brut et à la prise en compte du mécanisme d'enrichissement grâce à une équation de Fick. Ensuite, nous présentons succinctement les méthodes numériques et les algorithmes implémentés dans ce code, nous précisons les modifications apportées au code StarWaCS2D pour traiter la problématique des dépôts de paraffine en conduite.

IV.2 Équations gouvernantes

La géométrie du domaine de notre problème est une conduite 2D axisymétrique, Ω . Les coordonnées cylindriques, (r, θ, z) , sont choisies pour repérer un point de la conduite.

IV.2.1 Conservation de la masse

Soit Ω un domaine fermé de \mathbb{R}^2 et $[0, T]$ un intervalle de temps.

Un brut paraffinique, sous écoulement, se comporte comme un fluide incompressible. La conservation de la masse pour un écoulement incompressible s'écrit :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{U} = 0 \quad \text{Dans } \Omega \times [0, T] \quad (\text{IV.1})$$

ou $\vec{U} = (u_r, 0, w)$ est le vecteur vitesse et $\vec{\nabla} \cdot$ est l'opérateur divergence.

IV.2.2 Conservation de la quantité de mouvement.

L'équation de la quantité de mouvement s'écrit :

$$\rho \left(\frac{\partial \vec{U}}{\partial t} + \vec{U} \cdot \vec{\nabla} \vec{U} \right) + \vec{\nabla} P = \vec{\nabla} \cdot \underline{\underline{\tau}} \quad \text{Dans } \Omega \times [0, T] \quad (\text{IV.2})$$

ou ρ , P et $\underline{\underline{\tau}}$ sont respectivement la masse volumique, la pression et le tenseur déviateur des contraintes

Nous introduisons le nombre adimensionnel de Reynolds, R_e :

$$R_e = \frac{2\rho \bar{U} R}{\mu} \quad (\text{IV.3})$$

ou \bar{U} est la vitesse moyenne, μ la viscosité dynamique et R le rayon de la conduite.

Dans ces travaux nous nous limiterons généralement à l'étude d'écoulements laminares à savoir que le nombre de Reynolds ne dépassera pas 2100.

IV.2.3 Conservation de l'énergie

La forme la plus générale de l'équation de l'énergie pour un écoulement incompressible avec changement de phase s'écrit comme suit:

$$\rho C_f \frac{d\Theta}{dt} = \vec{\nabla} \cdot (\lambda_f \vec{\nabla} \Theta) + \underline{\underline{\tau}} : \underline{\underline{D}} + \rho \Delta h \frac{d\Phi_s}{dt} \quad \text{Dans } \Omega \times [0, T] \quad (\text{IV.4})$$

ou Δh est l'énergie de cristallisation, Φ_s est la fraction volumique cristallisée, C_f est la capacité calorifique du fluide et λ_f est la conductivité thermique du fluide. On rappelle que

$\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \vec{U} \cdot \vec{\nabla}$ est la dérivée particulière.

L'importance de la dissipation visqueuse est caractérisée par le nombre adimensionnel de Brinkman, Br , introduit ci dessous:

$$Br = \frac{\mu \bar{U}^2}{\lambda_f (\Theta_p - \bar{\Theta}_f)} \quad (IV.5)$$

ou Θ_p et $\bar{\Theta}_f$ sont respectivement la température à la paroi et la température moyenne du fluide.

Dans notre cas, les valeurs de ce nombre sont faibles (pour μ qui varie entre 10^{-3} et 10^{-1} , on a Br qui varie entre 10^{-4} et 10^{-2}). Nous pouvons donc négliger les termes de dissipation visqueuse.

Nous pouvons donc simplifier l'équation de l'énergie comme suit:

$$\rho C_f \frac{d\Theta}{dt} = \vec{\nabla} \cdot (\lambda_f \vec{\nabla} \Theta) + \rho \Delta h \frac{d\Phi_s}{dt} \quad (IV.6)$$

Afin de déterminer la longueur d'établissement du profil thermique, nous introduisons le nombre adimensionnel de Cameron, C_a :

$$C_a = \frac{\lambda_f L}{\rho C_f \bar{U} R^2} \quad (IV.7)$$

Ce nombre traduit le type du régime thermique dans le quel on se situe:

Si C_a est petit (typiquement inférieur à 10^{-2}), la température moyenne évolue linéairement dans l'écoulement .

Si C_a est grand (typiquement supérieur à 1), la température moyenne reste constante dans l'écoulement .

Si C_a est compris entre ces deux valeurs, le régime est transitoire.

De ce nombre , on déduit la longueur d'établissement de la température :

$$L_{\text{établ}} = \frac{\rho C_f \bar{U} R^2}{\lambda_f} \quad (IV.8)$$

IV.2.4 Équation bilan et de transport des normales paraffines dans le brut.

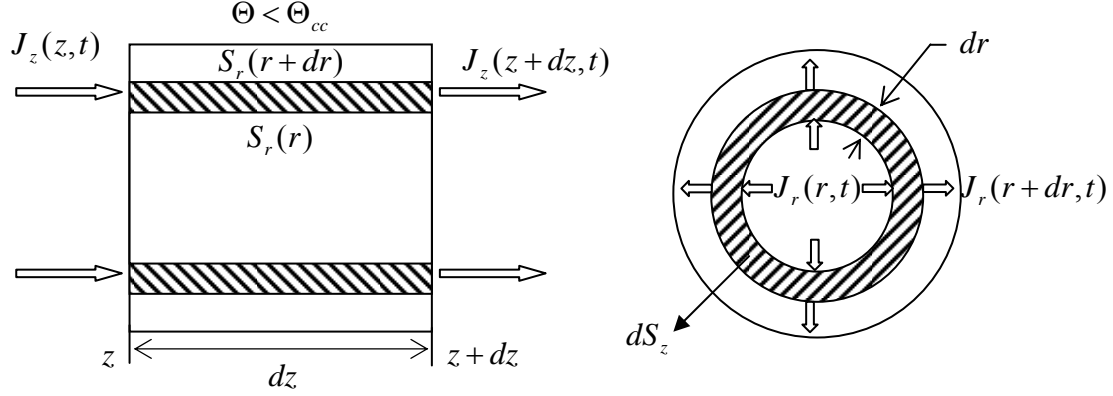


Fig- IV-1: Bilan de matière des normales paraffines dissoutes.

Soit $N_L(r, z, t)$ le nombre de particules de normales paraffines dissoutes se trouvant dans le volume élémentaire $2\pi r dr dz$. Les flux de ces particules dissoutes radialement et axialement en $r, r + dr, z$ et $z + dz$ sont respectivement $J_r(r, t)$, $J_r(r + dr, t)$, $J_z(z, t)$ et $J_z(z + dz, t)$.

Pendant l'intervalle de temps dt , la variation dN_L du nombre de particules de paraffines dissoutes dans le volume élémentaire $2\pi r dr dz$ est égale au nombre de particules de paraffines dissoutes entrantes moins les particules des paraffines dissoutes sortantes radialement et axialement moins la quantité de normales paraffines transformées en cristaux de paraffines, dN_s . Nous négligeons, dans notre démonstration, la quantité de cristaux de paraffine qui pourrait se dissoudre car on se situe dans le processus de refroidissement.

Cela se traduit mathématiquement par l'équation suivante :

$$dN_L = (J_z(z, t) - J_z(z + dz, t))dS_z dt + (J_r(r, t)S_r(r) - J_r(r + dr, t)S_r(r + dr))dt - dN_s \quad (\text{IV.9})$$

Soit encore :

$$dN_L = -\frac{\partial[J_z(z, t)]}{\partial z} dS_z dz dt - \frac{\partial(J_r(r, t)S_r(r))}{\partial r} dr dt - dN_s \quad (\text{IV.10})$$

On a donc :

$$\frac{1}{2\pi r dr dz} \frac{dN_L}{dt} = -\left(\frac{\partial[J_z(z, t)]}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial(r J_r(r, t))}{\partial r} \right) - \frac{1}{2\pi r dr dz} \frac{dN_s}{dt} \quad (\text{IV.11})$$

Nous avons donc en fonction des concentrations de paraffines dissoutes et cristallisées,

$$C_l = \frac{N_L(r, z, t)}{2\pi r dr dz} \text{ et } C_s = \frac{N_s(r, z, t)}{2\pi r dr dz} :$$

$$\frac{dC_l}{dt} = - \left(\frac{\partial [J_z(z, t)]}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial [J_r(r, t)]}{\partial r} \right) - \frac{dC_s}{dt} \quad (\text{IV.12})$$

Écrivons, à présent, la première loi de Fick :

$$\vec{J} = -D_m \vec{\nabla} C_l \quad (\text{IV.13})$$

ou $\vec{J} = (J_r, 0, J_z)$ est le vecteur flux de particules, D_m est le coefficient de diffusion moléculaire et $\vec{\nabla} = \left(\frac{\partial}{\partial r}, \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta}, \frac{\partial}{\partial z} \right)$ est le vecteur gradient.

En combinant les deux dernières équations, nous obtenons la deuxième relation de Fick avec un terme puits:

$$\frac{dC_l}{dt} = - \left(\frac{\partial}{\partial z} \left[D_m \frac{\partial C_l}{\partial z} \right] + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r D_m \frac{\partial C_l}{\partial r} \right] \right) - \frac{dC_s}{dt} \quad (\text{IV.14})$$

Finalement, nous avons:

$$\frac{dC_l}{dt} = \vec{\nabla} \cdot [D_m \vec{\nabla} C_l] - \frac{dC_s}{dt} \quad (\text{IV.15})$$

Dans le cadre de l'étude des dépôts de paraffine dans les oléoducs, les paraffines cristallisées apparaissent essentiellement près de la paroi par conséquent les termes convectifs de ces cristaux sont négligeables d'où :

$$\frac{\partial C_l}{\partial t} + \vec{U} \cdot \vec{\nabla} C_l = \vec{\nabla} \cdot (D_m \vec{\nabla} C_l) - \frac{\partial C_s}{\partial t} \quad (\text{IV.16})$$

En complément en tout point du domaine la teneur en paraffine résulte donc de la somme des paraffines dissoutes et cristallisées.

$$C = C_l + C_s \quad (\text{IV.17})$$

Comme nous l'avons vu au cours du chapitre II la cristallisation des paraffines résulte d'un processus thermodynamique complexe dont le détail n'est pas l'objet de ce travail. Nous nous contenterons ici d'écrire que la fraction cristallisée peut-être déterminée à l'aide d'une fonction de la température et de la teneur en paraffine.

$$C_s = f(\Theta, C) \quad (IV.18)$$

Nous verrons ultérieurement comment déterminer cette fonction.

IV.2.5 Loi de comportement

Nous avons vu précédemment que les bruts paraffiniques ont un comportement viscoplastique qui dépend étroitement des effets thermiques. En conséquence les paramètres intrinsèques du fluide à savoir la consistance et la contrainte seuil dépendent de la température d'où la loi rhéologique suivante :

$$\begin{cases} \underline{\underline{\tau}} = 2\mu(\Theta).\underline{\underline{D}} & si \Theta > \Theta_{cc} \\ \underline{\underline{\tau}} = 2\mu(\Theta).\underline{\underline{D}} + \frac{\underline{\underline{D}}}{\|\underline{\underline{D}}\|}.\tau_0(\Theta) & si \Theta < \Theta_{cc} et \|\underline{\underline{\tau}}\| > \tau_0(\Theta) \\ \underline{\underline{D}} = 0 & si \Theta < \Theta_{cc} et \|\underline{\underline{\tau}}\| \leq \tau_0(\Theta) \end{cases} \quad (IV.17)$$

avec :

$$\|X\| = \sqrt{\frac{1}{2} \sum_{1 \leq i, j \leq d} |X_{ij}|^2} \quad (IV.18)$$

$\underline{\underline{D}}$ et τ_0 sont respectivement le tenseur de taux de déformation et la contrainte seuil du fluide.

Nous rappelons que Θ_{cc} est la température de cristallisation commençante.

Nous avons fait l'hypothèse que la formation d'un dépôt est due à l'association des effets thermiques, d'un mécanisme d'enrichissement en paraffines et d'un changement de comportement local du brut. Soit, C_s , la fraction des paraffines qui ont cristallisé près de la paroi sous l'effet de la température. Le modèle ci dessus s'écrit donc :

$$\begin{cases} \underline{\underline{\tau}} = 2\mu(\Theta, C_s).\underline{\underline{D}} + \frac{\underline{\underline{D}}}{\|\underline{\underline{D}}\|}.\tau_0(\Theta, C_s) & si \|\underline{\underline{\tau}}\| > \tau_0(\Theta, C_s) \\ \underline{\underline{D}} = 0 & si \|\underline{\underline{\tau}}\| \leq \tau_0(\Theta, C_s) \\ \tau_0 = 0 & si \Theta > \Theta_{CC} \\ \tau_0 = \tau_0(\Theta, C_s) & si \Theta \leq \Theta_{CC} \end{cases} \quad (IV.19)$$

Nous introduisons le nombre adimensionnel de Bingham, Bi qui rend compte des effets viscoplastique:

$$Bi = \frac{\tau_0(\Theta, C_s)}{\tau_w} \quad (IV.20)$$

ou τ_w est la contrainte de cisaillement à la paroi de la conduite.

Il y a plusieurs scénarios possibles:

Si $\Theta > \Theta_{cc}$, la contrainte seuil est nulle donc $Bi = 0$. Le brut est cisailé dans toute la section et se comporte comme un fluide newtonien.

Si dans une région, Ω_f , de la conduite $\Theta < \Theta_{cc}$, une contrainte seuil apparaît. Dans la situation où $0 < Bi < 1$, il y a un écoulement de type bouchon dans Ω . En revanche si le nombre $Bi \geq 1$, le fluide ne s'écoule pas dans la zone Ω .

IV.2.6 Système d'équations du problème

En somme, l'écoulement d'un brut viscoplastique incompressible, dont la consistance et la contrainte seuil dépendent d'une teneur en paraffines et de la température, est gouverné par le système d'équations suivant :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{U} = 0 \quad (IV.21)$$

$$\rho \left(\frac{\partial \vec{U}}{\partial t} + \vec{U} \cdot \vec{\nabla} \vec{U} \right) + \vec{\nabla} P = \vec{\nabla} \cdot \underline{\underline{\tau}} \quad (IV.22)$$

$$\rho C_f \left(\frac{\partial \Theta}{\partial t} + \vec{U} \cdot \vec{\nabla} \Theta \right) = \vec{\nabla} \cdot (\lambda_f \vec{\nabla} \Theta) \quad (IV.23)$$

$$\frac{\partial C_l}{\partial t} + \vec{U} \cdot \vec{\nabla} C_l = \vec{\nabla} \cdot (D_m \vec{\nabla} C_l) - \frac{\partial C_s}{\partial t} \quad (IV.24)$$

$$C = C_l + C_s \quad (IV.25)$$

$$C_s = f(\Theta, C) \quad (IV.26)$$

$$\begin{cases} \underline{\underline{\tau}} = 2\mu(\Theta, C_s) \cdot \underline{\underline{D}} + \frac{D}{\|\underline{\underline{D}}\|} \cdot \tau_0(\Theta, C_s) & \text{si } \|\underline{\underline{\tau}}\| > \tau_0(\Theta, C_s) \\ \underline{\underline{D}} = 0 & \text{si } \|\underline{\underline{\tau}}\| \leq \tau_0(\Theta, C_s) \\ \tau_0 = 0 & \text{si } \Theta > \Theta_{cc} \\ \tau_0 = \tau_0(\Theta, C_s) & \text{si } \Theta \leq \Theta_{cc} \end{cases} \quad (IV.27)$$

Il est à noter que les grandeurs ρ , C_f , λ_f , τ_0 , μ , D_m , C_s et C_l sont propres au fluide étudié (le brut). Elles seront déterminées expérimentalement; on verra par la suite comment .

IV.2.7 Domaine de résolution et les conditions aux limites du domaine d'écoulement

La géométrie du domaine est une conduite 2D axisymétrique de diamètre D et de longueur L représentée sur la figure Fig-IV-2. Les coordonnées cylindriques, (r, θ, z) , sont choisies pour repérer un point de la conduite.

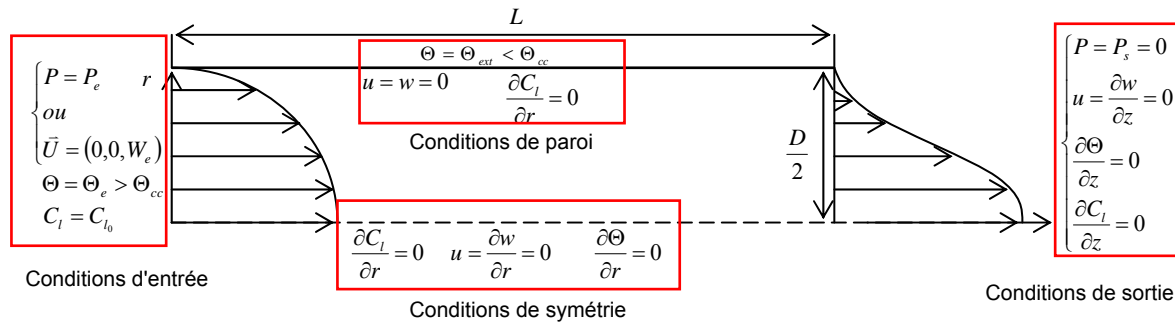


Fig- IV-2: Géométrie et conditions aux limites du domaine d'écoulement.

A l'entrée de la conduite, selon le problème étudié, on impose un champ de vitesse établi W_e ou une pression d'entrée $P = P_e$. Le brut entre avec une température Θ_e supérieure à Θ_{cc} et contient une teneur en normales paraffines égale à C_{l_0} .

A la paroi une condition de non glissement est imposée, $u = w = 0$ et une température Θ_{ext} inférieure à Θ_{cc} est choisie pour imposer un refroidissement à l'écoulement de telle sorte à favoriser un dépôt de paraffine. De plus la paroi de la conduite est imperméable, $\frac{\partial C_l}{\partial r}(R, t) = 0$.

A la sortie, nous fixons arbitrairement une pression de référence nulle, $P_s = 0$ et une vitesse radiale nulle. Une condition de Neumann est imposée à la vitesse axiale ainsi qu'à la température et à la concentration des normales paraffines dissoutes.

Nous simulons notre écoulement sur la moitié d'une conduite. Nous imposons donc des conditions de symétrie au champ de vitesse, de température et de concentration en normales paraffines suivant l'axe de symétrie.

IV.3 Formulation mathématique

Le système d'équations ci dessus peut se résoudre puisque nous avons autant d'équations que d'inconnues.

Néanmoins la discontinuité et la non dérivabilité de la loi de comportement ajoute une difficulté supplémentaire à la résolution du problème. En effet, les inconnues du problème de Stokes sont les vitesses et la pression; or la discontinuité de la loi de comportement est en contrainte, et par conséquent nous sommes incapables d'évaluer directement la distribution des contraintes dans les zones non cisailées. Il existe deux grandes familles de méthodes mathématiques pour s'affranchir de cette difficulté.

Une méthode classique permettant de modéliser des écoulements viscoplastiques est d'utiliser des modèles dits "régularisés" qui permettent de s'affranchir de la discontinuité de la loi exacte de Bingham en l'approximant par une loi continue. Nous pouvons citer par exemple la loi proposée en 1987 par Papanastasiou :

$$\mu(|D|) = \mu_0 + \frac{\tau_0}{\sqrt{2}|D|} \approx \mu_0 + \frac{\tau_0}{\sqrt{2}|D|} \left(1 + e^{-m\sqrt{2}|D|}\right) \quad (\text{IV.28})$$

Ce type de modèle introduit un paramètre de régularisation m . La qualité des résultats concernant les zones non cisailées dépend étroitement du choix de m . Généralement, les codes commerciaux utilisent cette approximation.

Le problème que nous cherchons à résoudre nécessite une connaissance exacte des zones non cisailées car ces zones seront considérées comme dépôts de paraffines et par conséquent les modèles "régularisés" ne peuvent pas être satisfaisants. Il nous faut donc des outils mathématiques permettant de résoudre la loi de comportement exacte. L'alternative à ces modèles régularisés est une méthode basée sur le lagrangien augmenté qui permet d'inclure la discontinuité de la loi de comportement dans la résolution. Le code que nous utilisons, "StarWaCS" est basé sur la deuxième méthode. Nous reprenons dans le chapitre ci dessous les grandes lignes numériques décrites dans la thèse de G. Vinay, 2005

Le second paragraphe est dédié à la résolution de la seconde loi de Fick qui possède un terme puits et pour laquelle nous utilisons la méthode de Marechuk-Yanenko afin de découpler les difficultés de résolution numérique.

IV.3.1 Résolution du problème vitesse-pressure par la méthode du lagrangien augmenté

IV.3.1.1 Rappels théoriques:

Soit à minimiser la fonction objective : $F(x_1, \dots, x_N)$, sous la contrainte égalité : $f(x_1, \dots, x_N) = 0$.

Les conditions nécessaires du 1er ordre donnent les points critiques de F (en ignorant d'abord la contrainte) :

$$\frac{\partial F}{\partial x_1} = \dots = \frac{\partial F}{\partial x_N} = 0 \quad (\text{IV.29})$$

Pour tenir compte de la contrainte, nous différencions $f(x_1, \dots, x_N) = 0$ comme suit :

$$df = \frac{\partial f}{\partial x_1} dx_1 + \dots + \frac{\partial f}{\partial x_N} dx_N = 0 \quad (\text{IV.30})$$

L'astuce de Lagrange est alors d'ajouter l'équation $df = 0$ à l'équation $dF = 0$, en introduisant une nouvelle variable inconnue λ appelée le multiplicateur de Lagrange :

$$dF + \lambda df = 0 \Rightarrow \frac{\partial F}{\partial x_i} + \lambda \frac{\partial f}{\partial x_i} = 0 \quad (i = 1, \dots, N) \quad (\text{IV.31})$$

Nous avons donc :

$$\frac{\partial (F + \lambda f)}{\partial x_i} = 0 \quad (i = 1, \dots, N) \quad (\text{IV.32})$$

Nous constatons que le problème général du départ avec contrainte revient à minimiser la fonctionnelle : $F + \lambda f$ sans contrainte.

Ce système est à N équations et nous avons N+1, $(x_1, \dots, x_N, \lambda)$, inconnues. La contrainte de départ complètera notre système afin que notre problème puisse être complètement résolu.

Nous pouvons généraliser ce résultat à un problème avec K contraintes $f_k = 0 \quad (1 \dots K)$:

$$\begin{cases} \text{Min } F(x) \\ \text{s.c. : } \vec{f}(x) = \vec{0} \end{cases} \Leftrightarrow \text{Min}(F(x) + \vec{\lambda} \cdot \vec{f}(x)) \quad (\text{IV.33})$$

L'utilisation des multiplicateurs de Lagrange simplifie la structure de la résolution d'un problème avec contraintes. En effet, en introduisant autant de multiplicateurs que de contraintes, nous ramenons le problème non linéaire en une série de problèmes linéaires ou la non linéarité est traitée localement.

Par la suite, nous travaillons avec le lagrangien augmenté. Celui-ci se construit en pénalisant le lagrangien. Notons $L(v, q)$ le lagrangien, le lagrangien augmenté s'écrit comme suit :

$$L_r(x, q) = L(x, q) + \frac{r}{2} \left| \vec{f}(x) \right|^2. \quad (\text{IV.34})$$

L'intérêt de ce choix est l'augmentation de la vitesse de convergence sans modification de la solution finale. Le choix de la constante r doit être optimal.

Le but de la section suivante est la transformation de la discontinuité de notre modèle de Bingham (IV.27) en un problème d'optimisation via le lagrangien augmenté.

IV.3.1.2 Transformation du problème vitesse-pression en un problème d'optimisation:

La loi rhéologique (IV.27) peut être écrite également de cette façon:

$$\underline{\underline{D}} = \begin{cases} \frac{1}{2\mu(\Theta, C_s)} \left(\left\| \underline{\underline{\tau}} \right\| - \tau_0(\Theta, C_s) \right) \frac{\underline{\underline{\tau}}}{\left\| \underline{\underline{\tau}} \right\|} & \text{si } \left\| \underline{\underline{\tau}} \right\| > \tau_0(\Theta, C_s) \\ 0 & \text{si } \left\| \underline{\underline{\tau}} \right\| \leq \tau_0(\Theta, C_s) \end{cases} \quad (\text{IV.35})$$

Pour simplifier les écritures, dans la suite nous écrirons $\tau_0(\Theta, C_s) = \tau_0$, $\mu(\Theta, C_s) = \mu$ et nous omettrons les deux barres sous les tenseurs $X = \underline{\underline{X}}$.

D'une part, Glowinski et al ont démontré que cette équation est équivalente à l'inégalité variationnelle ci-dessous :

$$(2\mu D, q - 2\mu D) + \sqrt{2}\tau_0 \int_{\Omega} (|q| - |2\mu D|) d\Omega \geq (\tau, q - 2\mu D), \quad \forall q \in (L_2(\Omega))^n \quad (\text{IV.36})$$

avec la norme de Frobenius définie comme suit:

$$|X| = \sqrt{2} \|X\|$$

En posant $q = 2\mu\tilde{q}$ nous obtenons :

$$2\mu(D, \tilde{q} - D) + \sqrt{2}\tau_0 \int_{\Omega} (|\tilde{q}| - |D|) d\Omega \geq (\tau, \tilde{q} - D), \quad \forall \tilde{q} \in (L_2(\Omega))^n \quad (\text{IV.37})$$

D'où :

$$\begin{aligned} 2\mu(D, \tilde{q}) + \sqrt{2}\tau_0 \int_{\Omega} |\tilde{q}| d\Omega - (\tau, \tilde{q}) &\geq \\ 2\mu(D, D) + \sqrt{2}\tau_0 \int_{\Omega} |D| d\Omega - (\tau, D), \quad \forall \tilde{q} \in (L_2(\Omega))^n \end{aligned} \quad (\text{IV.38})$$

Cette dernière inégalité variationnelle peut être traduite par un problème de minimisation sans contrainte. Soit la fonctionnelle $J(q)$ définie par

$$\boxed{J(q) = \mu \int_{\Omega} |q|^2 d\Omega + \sqrt{2}\tau_0 \int_{\Omega} |q| d\Omega - (\tau, q)} \quad (\text{IV.39})$$

La solution D du problème de minimisation vérifie :

$$J(D) = \min_q J(q) \quad (\text{IV.40})$$

D'autre part, nous avons le système d'équations suivant:

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \cdot \vec{U} = 0 & \text{sur } \Omega \times [0, T] \\ \rho \left(\frac{\partial \vec{U}}{\partial t} + \vec{U} \cdot \vec{\nabla} \vec{U} \right) - \vec{\nabla} \cdot \tau + \vec{\nabla} P = 0 & \text{sur } \Omega \times [0, T] \\ + C.L \end{cases} \quad (\text{IV.41})$$

Introduisons les espaces vectoriels suivants :

$$H^1(\Omega) = \{v / v \text{ et } \partial_i v \in L_2, i \in \{1, d\}\}$$

$$H_0^1(\Omega) = \{v / v \in H^1(\Omega), v = 0 \text{ sur } \Gamma_d\}$$

$$H_g^1(\Omega) = \{v / v \in H^1(\Omega), v = g \text{ sur } \Gamma_d\}$$

$$D(\Omega) = (L_2(\Omega))^{d \times d}, d = \text{dimension de l'espace physique.}$$

Soit $\frac{\partial \vec{U}}{\partial t}$ discrétisé, en temps, de la manière suivante :

$$\frac{\partial \vec{U}}{\partial t} = \frac{\vec{U}^k - \vec{U}^{k-1}}{\Delta t}. \quad (\text{IV.42})$$

Nous avons donc \vec{U}^k et P^k solution de :

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \vec{U}^k = 0 \text{ sur } \Omega \times [0, T] \\ \frac{\rho}{\Delta t} \vec{U}^k + \vec{\nabla} \cdot \vec{\tau}^k + \vec{\nabla} P^k = \vec{f}^k \text{ sur } \Omega \times [0, T] \end{cases} \quad (\text{IV.43})$$

Dans la suite nous omettrons l'indice k pour alléger les écritures.

La formulation variationnelle du problème en (\vec{U}, P) s'écrit :

Trouver $(\vec{U}, P) \in H_g^1(\Omega) \times L_2(\Omega)$ tels que :

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \cdot \vec{U} \cdot q d\Omega = 0 \quad \forall q \in L_2(\Omega) \\ \frac{\rho}{\Delta t} \int_{\Omega} \vec{U} \cdot \vec{v} d\Omega - \int_{\Omega} \vec{\nabla} \cdot \vec{\tau} \cdot \vec{v} d\Omega + \int_{\Omega} \vec{\nabla} P \cdot \vec{v} d\Omega - \int_{\Omega} \vec{f} \cdot \vec{v} d\Omega = 0 \quad \forall v \in H_0^1(\Omega) \\ + CL \end{cases} \quad (\text{IV.44})$$

En intégrant par parties et sachant que $(\vec{\tau}, \vec{\nabla} \vec{v}) = (\vec{\tau}, D(\vec{v}))$, nous obtenons pour la première équation :

$$\int_{\Omega} \vec{\tau} : D(\vec{v}) d\Omega = (\vec{\tau}, D(\vec{v})) = -\frac{\rho}{\Delta t} \int_{\Omega} \vec{U} \cdot \vec{v} d\Omega + \int_{\Omega} \vec{\nabla} \cdot \vec{v} P d\Omega + \int_{\Omega} \vec{f} \cdot \vec{v} d\Omega \quad \forall \vec{v} \in H_0^1(\Omega) \quad (\text{IV.45})$$

A présent, nous introduisons $q = D(\vec{v}) \in D(\Omega)$, et nous remplaçons dans la fonctionnelle $J(q)$ l'expression de $(\vec{\tau}, \nabla \vec{v}) = (\vec{\tau}, D(\vec{v}))$ par sa valeur. Nous obtenons ainsi la fonctionnelle $J(\vec{v}, l, q)$ définie par :

$$J(\vec{v}, l, q) = \frac{\rho}{\Delta t} \int_{\Omega} \vec{U} \cdot \vec{v} d\Omega + \mu \int_{\Omega} |q|^2 d\Omega + \sqrt{2} \tau_0 \int_{\Omega} |q| d\Omega - \int_{\Omega} l \cdot \vec{\nabla} \cdot \vec{v} d\Omega - \int_{\Omega} \vec{f} \cdot \vec{v} d\Omega \quad (\text{IV.46})$$

Enfin nous relaxons la contrainte $q - D(\vec{v}) = 0$ par l'introduction d'un champ tensoriel de multiplicateurs de Lagrange $\alpha \in D(\Omega)$. Nous obtenons le lagrangien suivant :

$$L(\vec{v}, l, q, \alpha) = J(\vec{v}, l, q) + \int_{\Omega} \alpha : (D(\vec{v}) - q) d\Omega \quad (\text{IV.47})$$

En lagrangien augmenté :

$$L_r(\vec{v}, l, q, \alpha) = L(\vec{v}, l, q, \alpha) + \frac{r}{2} \int_{\Omega} |D(\vec{v}) - q|^2 d\Omega \quad (\text{IV.48})$$

Il reste à trouver le point selle $(\vec{U}, P, d, \lambda) \in H_g^1(\Omega) \times L_2(\Omega) \times D(\Omega) \times D(\Omega)$ solution de :

$$(\vec{U}, P, d, \lambda) = \underset{v}{\text{Min}} \underset{l}{\text{Max}} \underset{d}{\text{Min}} \underset{\alpha}{\text{Max}} L_r(\vec{v}, l, q, \alpha) \quad (\text{IV.49})$$

Notons que, dans l'expression du lagrangien augmenté, le troisième terme n'est pas dérivable. Ceci implique l'utilisation d'une inégalité variationnelle pour réaliser la seconde équation. D'autre part, la pression p apparaît naturellement comme un multiplicateur de Lagrange pour la contrainte de continuité $\vec{\nabla} \cdot \vec{U} = 0$. Enfin le terme $\int_{\Omega} |q|^2 d\Omega$ étant dérivable, nous pouvons donc le remplacer par $\int_{\Omega} |D(\vec{v})|^2 d\Omega$.

IV.3.2 Établissement de l'algorithme de résolution des équations de la dynamique (Uzawa) :

Écrivons les équations d'optimalité de ce problème :

Première équation :

$$\underset{v}{\text{Min}}(L_r(\vec{v}, P, q, \alpha)) \Leftrightarrow \frac{\partial L_r(\vec{U}, P, d, \lambda)}{\partial \vec{U}}(\vec{v}) = 0 \quad (\text{IV.50})$$

Où $\frac{\partial}{\partial \vec{U}}(\vec{v})$ est la dérivée directionnelle dans la direction \vec{v} et au point \vec{U} .

Ceci implique la formulation faible suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\rho}{\Delta t} \int_{\Omega} \vec{U} \cdot \vec{v} d\Omega + \int_{\Omega} (2\mu + r) D(\vec{v}) : D(\vec{U}) d\Omega \\ - r \int_{\Omega} d : D(\vec{v}) d\Omega - \int_{\Omega} \vec{f} \cdot \vec{v} d\Omega - \int_{\Omega} \vec{\nabla} \vec{v} \cdot p d\Omega + \int_{\Omega} \lambda : D(\vec{v}) d\Omega = 0 \end{aligned} \quad (\text{IV.51})$$

En intégrant par parties, et sachant que $(D(\vec{U}), D(\vec{v})) = (D(\vec{U}), \nabla \vec{v})$, nous obtenons :

$$\int_{\Omega} \left[\frac{\rho}{\Delta t} \vec{U} - \vec{\nabla}((2\mu + r)D(\vec{U})) + r\nabla(d) - \vec{f} + \vec{\nabla}P - \vec{\nabla}\lambda \right] \cdot \vec{v} d\Omega = 0 \quad (\text{IV.52})$$

D'où la formulation forte :

$$\rho \frac{\partial \vec{U}}{\partial t} - \nabla((2\mu + r)D(\vec{U})) + \vec{\nabla}P = \nabla(\lambda - rd) \quad (\text{IV.53})$$

Seconde équation :

$$\begin{aligned}
\text{Max}_l(L_r(\vec{v}, P, q, \alpha)) &\Leftrightarrow \frac{\partial L_r(\vec{v}, P, q, \alpha)}{\partial P}(v) = 0 \\
\Rightarrow -\int_{\Omega} l \cdot \vec{\nabla} \cdot \vec{U} d\Omega &= 0
\end{aligned} \tag{IV.54}$$

Soit en formulation forte :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{U} = 0. \tag{IV.55}$$

Troisième équation :

$$\text{Min}_q(L_r(u, q, \lambda)) \tag{IV.56}$$

Cette condition implique l'inégalité variationnelle ci dessous :

$$\begin{aligned}
\tau_0 \int_{\Omega} |q| d\Omega + \int_{\Omega} \lambda (D(\vec{U}) - q) d\Omega + \frac{r}{2} \int_{\Omega} (D(\vec{U}) - q)^2 d\Omega \geq \\
\tau_0 \int_{\Omega} |d| d\Omega + \int_{\Omega} \lambda (D(\vec{U}) - d) d\Omega + \frac{r}{2} \int_{\Omega} (D(\vec{U}) - d)^2 d\Omega
\end{aligned} \tag{IV.57}$$

Nous obtenons donc :

$$\begin{aligned}
\sqrt{2}\tau_0 \int_{\Omega} |q| d\Omega - \sqrt{2}\tau_0 \int_{\Omega} |d| d\Omega - \int_{\Omega} \lambda (q - d) d\Omega - \frac{r}{2} \int_{\Omega} [2D(\vec{U})(q - d) + q^2 - d^2] d\Omega \geq 0 \\
\Rightarrow \sqrt{2}\tau_0 \int_{\Omega} |q| - |d| d\Omega - \int_{\Omega} (\lambda + rD(\vec{U}))(d - q) d\Omega + \frac{r}{2} ((q + d), (q - d)) \geq 0 \\
\Rightarrow \sqrt{2}\tau_0 \int_{\Omega} |q| - |d| d\Omega - \int_{\Omega} (\lambda + rD(\vec{U}))(q - d) d\Omega + r(d, (q - d)) \geq 0
\end{aligned} \tag{IV.58}$$

Posons $\Sigma = \lambda + rD(\vec{U})$.

D'après le théorème énoncé par Glowinski et al. cette inégalité est équivalente à :

$$\begin{aligned}
d = 0 & \quad \text{si } |\lambda + rD(\vec{U})| < \sqrt{2}\tau_0 \\
d = \frac{1}{r} \Sigma \left(1 - \frac{\sqrt{2}\tau_0}{|\Sigma|} \right) & \quad \text{si } |\lambda + rD(\vec{U})| > \sqrt{2}\tau_0
\end{aligned} \tag{IV.59}$$

La dernière condition d'optimalité est :

$$\begin{aligned}
\text{Max}_{\alpha}(L_r(\vec{v}, P, q, \alpha)) &\Leftrightarrow \frac{\partial L_r(\vec{U}, P, d, \lambda)}{\partial \lambda}(\alpha) = 0 \\
\Rightarrow \int_{\Omega} (D(\vec{U}) - d) : \alpha d\Omega &= 0
\end{aligned} \tag{IV.60}$$

Soit en formulation forte :

$$D(\vec{U}) - d = 0 \quad (\text{IV.61})$$

La solution du problème de point selle est obtenue par un algorithme de type Uzawa. Cet algorithme, basé sur les quatre équations d'optimalité, se décompose en trois étapes. Cet algorithme est intégré dans l'algorithme général présenté dans le paragraphe IV-3-4

IV.3.3 Résolution de l'équation de diffusion avec un terme puits par la méthode de Marchuk-Yanenko (MY) .

La décomposition de Marchuk-Yanenko (MY) permet de décomposer un problème donné en plusieurs sous problèmes afin de découpler les difficultés.

Un problème de la forme suivante :

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} + A(\varphi, t) + B(\varphi, t) = f \quad (\text{IV.62})$$

peut être décomposé en plusieurs étapes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \varphi}{\partial t} + A(\varphi, t) = f_1(t), \text{ sur } (t^{k-1}, t^k), \varphi(t^{k-1}) = \varphi^{k-1}, \varphi(t^k) = \varphi^{k-\frac{1}{2}} \\ \frac{\partial \varphi}{\partial t} + B(\varphi, t) = f_2(t), \text{ sur } (t^{k-1}, t^k), \varphi(t^{k-1}) = \varphi^{k-\frac{1}{2}}, \varphi(t^k) = \varphi^k \\ \text{ou} \\ f = \sum_i f_i \end{array} \right. \quad (\text{IV.63})$$

Nous appliquons cette méthode à l'équation de la conservation des paraffines dissoutes en posant:

$$\varphi = C_l \quad (\text{IV.64})$$

$$A(\varphi, t) = \vec{U} \cdot \vec{\nabla} C_l - \vec{\nabla} \cdot (D_m \vec{\nabla} C_l) \quad (\text{IV.65})$$

$$B(\varphi, t) = -\frac{\partial C_s}{\partial t} \quad (\text{IV.66})$$

Cette méthode nécessite que le pas de temps Δt soit petit. Cela n'est pas gênant car, de toutes façons, les équations de mouvement sont résolues de manière explicite et donc le pas de temps est nécessairement petit. L'algorithme de MY appliqué à notre problématique est détaillé dans l'algorithme général proposé au paragraphe IV-3-4.

IV.3.4 Algorithme général de résolution.

Le système d'équations, présenté dans le paragraphe IV.2.6, représentant l'écoulement d'un fluide viscoplastique incompressible dont la contrainte seuil et la viscosité plastique dépendent de la température et de la quantité de cristaux de paraffine, se résout de manière découplée. Les équations de la dynamique sont d'abord résolues, ensuite les équations de l'énergie et de la conservation des normales paraffines dissoutes sont résolues successivement. Le calcul s'arrête lorsque le régime stationnaire est atteint pour la vitesse, la température et la concentration de paraffine. Nous présentons ci dessous l'algorithme général :

- Initialisation de $\vec{U}^0, P^0, \underline{d}^0, \lambda^0, C_l^0$ et Θ^0 .
- Boucle en temps : $t^k = t^{k-1} + \Delta t$ avec $k \geq 1$.
- Résolution problème vitesse-pression par l'algorithme d'Uzawa détaillé dans IV-3-2 (détermination de U^k et P^k):

$$\text{Initialisation: } \lambda_0^k = \lambda^{k-1}, \vec{U}_0^k = \vec{U}^{k-1}, d_0^k = d^{k-1} \text{ et } P_0^k = P^{k-1} \quad (\text{IV.67})$$

$i \geq 0$

Calcul vitesse-pression:

$$\begin{cases} \frac{\rho}{\Delta t} U_{i+1}^k - \vec{\nabla} \left((2\mu^{k-1} + r) D(\vec{U}_{i+1}^k) \right) + \vec{\nabla} P_{i+1}^k = \vec{\nabla} (\lambda_i^k - r d_i^k) - \vec{f}(U^{k-1}) \text{ dans } \Omega \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{U}_{i+1}^k = 0 \text{ dans } \Omega \\ \vec{U}_{i+1}^k = \vec{U} \text{ sur } \Gamma \end{cases} \quad (\text{IV.68})$$

Mise à jour du tenseur de taux déformation d_{i+1}^k :

$$d_{i+1}^k = \begin{cases} 0 & \text{si } |\lambda_i^k + r D(\vec{U}_{i+1}^k)| < \sqrt{2}\tau_0 \\ \frac{1}{r} (\lambda_i^k + r D(\vec{U}_{i+1}^k)) \left(1 - \frac{\sqrt{2}\tau_0}{|\lambda_i^k + r D(\vec{U}_{i+1}^k)|} \right) & \text{si } |\lambda_i^k + r D(\vec{U}_{i+1}^k)| > \sqrt{2}\tau_0 \end{cases} \quad (\text{IV.69})$$

Mise à jour du tenseur des multiplicateurs de Lagrange:

$$\lambda_{i+1}^k = \lambda_i^k + r (D(\vec{U}_{i+1}^k) - d(\vec{U}_{i+1}^k)) \quad (\text{IV.70})$$

Convergence si :
$$\|D(\vec{U}) - d\| < \varepsilon_1, \frac{\|\vec{U}^{k+1} - \vec{U}^k\|}{\|U_{\max}\|} < \varepsilon_2 \text{ et } \frac{\|P^{k+1} - P^k\|}{\|P_{\max}\|} < \varepsilon_3 \quad (\text{IV.71})$$

$i = i + 1$

- Résolution de l'équation de l'énergie discrétisée en temps par la méthode d'Euler explicite d'ordre 1 (détermination de Θ^k):

$$\rho C_f \left(\frac{\Theta^k}{\Delta t} + \vec{U}^k \cdot \vec{\nabla} \Theta^{k-1} \right) = \lambda_f \vec{\nabla}^2 \Theta^k + \rho C_f \frac{\Theta^{k-1}}{\Delta t} \quad (\text{IV.72})$$

- Résolution de l'équation de transport des normales paraffines (dont équation de Fick) par la méthode de Marchuck-Yanenko (détermination de C_l^k et C_s^k)
- Trouver $C_l^{k-\frac{1}{2}}$ en résolvant l'équation de diffusion sans terme puits (cristallisation des normales paraffines) discrétisée en temps par la méthode d'Euler explicite d'ordre 1:

$$\frac{C_l^{k-\frac{1}{2}} - C_l^{k-1}}{\Delta t} + \vec{U}^k \cdot \vec{\nabla} C_l^{k-\frac{1}{2}} - \vec{\nabla} \cdot \left(D_m \vec{\nabla} C_l^{k-\frac{1}{2}} \right) = 0 \quad (\text{IV.73})$$

- Trouver C_s^k en résolvant l'équation suivante:

$$C_s^k = f(\Theta^k, C_l^{k-\frac{1}{2}} + C_s^{k-1}) \quad (\text{IV.74})$$

- Trouver C_l^k en résolvant l'équation suivante:

$$\frac{C_l^k - C_l^{k-\frac{1}{2}}}{\frac{1}{2} \Delta t} + \frac{C_s^k - C_s^{k-1}}{\Delta t} = 0 \quad (\text{IV.75})$$

Sorties des résultats $\vec{U}^k, P^k, \Theta^k, C_l^k$ et C_s^k .

- Convergence si $\Delta \Theta^k, \Delta \vec{U}^k, \Delta C_l^k \leq \varepsilon_4$ avec $\Delta X^k = \frac{\max_{\Omega} |X^k - X^{k-1}|}{\Delta t}$
- $k = k + 1$

IV.4 Discretisation des équations d'équilibre par la méthode des volumes finis et résolution numérique:

Nous présentons ici, de manière succincte, le développement numérique du code Starwacs2D (G.Vinay, 2005).

Le code StarWACS2D utilise la méthode des volumes finis pour résoudre les équations d'équilibre. Cette méthode se base sur la discrétisation de l'espace de calcul Ω en un nombre fini de volumes. A chaque inconnue du problème $(u, w, P, \Theta, C_l, C_s)$ est associée un volume de contrôle centré autour de celle-ci, comme le montre la figure IV-3, permettant ainsi d'intégrer sur chaque volume les équations d'équilibre. Une grille décalée de Marker And Cell (MAC) a été utilisée pour la disposition des variables de vitesse, de pression, de température et de concentration de paraffine afin d'avoir une précision d'ordre 2 pour les dérivées premières (Cf.Fig-IV-3).

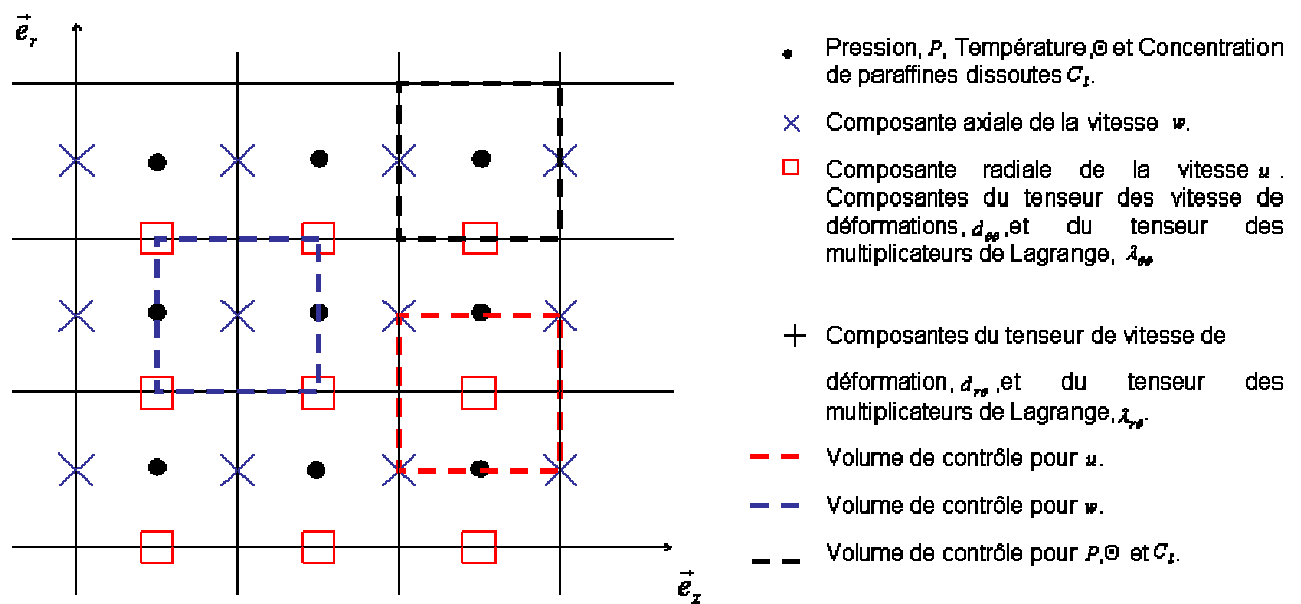


Fig- IV-3:Disposition décalée des inconnues du problème sur le maillage.

A titre d'illustration, nous détaillons ci dessous la discrétisation et l'intégration de l'équation de conservation de la quantité de paraffine dissoutes par la méthode des volumes finis. Le principe de la résolution reste le même pour les autres équations d'équilibre.

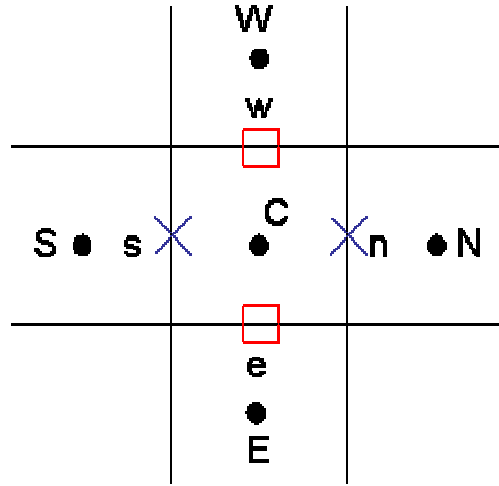


Fig- IV-4: Volume de contrôle Ω_{C_l} .

L'équation (IV-73) intégrée sur le volume Ω_{C_l} (Cf.Fig-IV-4) s'écrit comme suit :

$$\int_{\Omega_{C_l}} \frac{\partial C_l}{\partial t} d\Omega_{C_l} + \int_{\Omega_{C_l}} \vec{U} \cdot \vec{\nabla} C_l d\Omega_{C_l} - \int_{\Omega_{C_l}} \vec{\nabla} \cdot (D_m \vec{\nabla} C_l) d\Omega_{C_l} = 0 \quad (IV.76)$$

Soit $\vec{F} = \vec{U} \cdot C_l$, on a donc $\vec{U} \cdot \vec{\nabla} C_l = \vec{\nabla} \cdot \vec{F} - C_l \vec{\nabla} \cdot \vec{U}$. L'équation IV-76 devient:

$$\int_{\Omega_{C_l}} \frac{\partial C_l}{\partial t} d\Omega_{C_l} + \int_{\Omega_{C_l}} \vec{\nabla} \cdot \vec{F} d\Omega_{C_l} - \int_{\Omega_{C_l}} \vec{\nabla} \cdot (D_m \vec{\nabla} C_l) d\Omega_{C_l} - \int_{\Omega_{C_l}} C_l \vec{\nabla} \cdot \vec{U} d\Omega_{C_l} = 0 \quad (IV.77)$$

Nous transformons l'équation IV-76 en utilisant le théorème de Green:

$$\int_{\Omega_{C_l}} \frac{\partial C_l}{\partial t} d\Omega_{C_l} + \int_{S_{C_l}} \vec{F} \cdot \vec{n} dS_{C_l} - \int_{S_{C_l}} D_m \vec{\nabla} C_l \cdot \vec{n} dS_{C_l} - \underbrace{\int_{\Omega_{C_l}} C_l \vec{\nabla} \cdot \vec{U} d\Omega_{C_l}}_4 = 0 \quad (IV.78)$$

Dans l'étude des dépôts de paraffine, l'écoulement est considéré incompressible. En conséquence le terme 4 de l'équation (IV.78) est identiquement nul (StarWACS2D permet de calculer les écoulements faiblement compressible qu'on retrouve dans la problématique de redémarrage d'écoulement de brut gélifié).

Le terme temporel est discrétisé par un schéma d'ordre 1. L'équation IV-78 devient :

$$\left(C_l^k - C_l^{k-\frac{1}{2}} \right) \frac{r_c dr_c dz_c}{\Delta t} + \left(F_w^{k-\frac{1}{2}} r_w - F_e^{k-\frac{1}{2}} r_e \right) dz_c + \left(F_n^{k-\frac{1}{2}} - F_s^{k-\frac{1}{2}} \right) r_c dr_c = \quad (IV.79)$$

$$\left(G_w^k r_w - G_e^k r_e \right) dz_c + \left(G_n^k - G_s^k \right) r_c dr_c$$

Le flux convectif F est discrétisé par la méthode TVD Lax-Wendroff Superbee. Cette méthode est plus amplement détaillée dans la thèse de G.Vinay, 2005. Le flux diffusif est discrétisé par un schéma implicite centré défini comme suit:

$$G_w^k = \frac{C_{IW}^k - C_{IC}^k}{dr_w}; G_e^k = \frac{C_{IC}^k - C_{IE}^k}{dr_e}; G_n^k = \frac{C_{IN}^k - C_{IC}^k}{dr_n} \text{ et } G_s^k = \frac{C_{IC}^k - C_{IS}^k}{dr_s} \quad (IV.80)$$

Les indices W, E, N, S et C représentent la position de la concentration de la paraffine dissoute. Les indices w, e, n, s indiquent la localisation des flux F, G et des composantes de la vitesse w et u .

Nous aboutissons donc au système d'équations suivant:

$$f_C C_{IC}^k - f_W C_{IW}^k - f_E C_{IE}^k - f_N C_{IN}^k - f_S C_{IS}^k = S \quad (IV.81)$$

Avec:

$$f_W = -D_m \times \frac{r_w}{dz_c dr_w}; f_E = -D_m \times \frac{r_e}{dz_c dr_e};$$

$$f_N = -D_m \times \frac{r_C dr_C}{dz_n}; f_S = -D_m \times \frac{r_C dr_C}{dz_s}; \quad (IV.82)$$

$$f_C = \frac{r_c dr_c dz_c}{\Delta t} - f_N - f_S - f_W - f_E \quad \text{et}$$

$$S_f = C_{IC}^{k-\frac{1}{2}} \times \frac{r_c dr_c dz_c}{\Delta t} - \left(F_w^{k-\frac{1}{2}} r_w - F_e^{k-\frac{1}{2}} r_e \right) dz_c + \left(F_n^{k-\frac{1}{2}} - F_s^{k-\frac{1}{2}} \right) r_c dr_c.$$

Résoudre l'équation de la conservation de la quantité des paraffines dissoutes revient à résoudre le système linéaire suivant:

$$\underline{\underline{F}} \cdot \vec{C} = \vec{S}_f \quad (IV.83)$$

ou $\underline{\underline{F}}$ est une matrice tridiagonale symétrique, \vec{S}_f est le vecteur second membre et \vec{C} est le vecteur de la concentration de paraffine dissoutes.

De la même manière, la discrétisation de l'équation de l'énergie par la méthode des volumes finis nous amène au système linéaire suivant :

$$\underline{\underline{E}} \cdot \vec{\Theta} = \vec{S}_e \quad (\text{IV.84})$$

avec :

$$\begin{aligned} e_W &= -\frac{\lambda_f}{\rho C_p} \times \frac{r_w}{dz_c dr_w}; e_E = -\frac{\lambda_f}{\rho C_p} \times \frac{r_e}{dz_c dr_e}; \\ e_N &= -\frac{\lambda_f}{\rho C_p} \times \frac{r_c dr_c}{dz_n}; e_S = -\frac{\lambda_f}{\rho C_p} \times \frac{r_c dr_c}{dz_s}; \\ e_C &= \frac{r_c dr_c dz_c}{\Delta t} - f_N - f_S - f_W - f_E. \\ S_e &= \Theta_{IC}^{k-1} \times \frac{r_c dr_c dz_c}{\Delta t} - (F_w^{k-1} r_w - F_e^{k-1} r_e) dz_c + (F_n^{k-1} - F_s^{k-1}) r_c dr_c. \end{aligned} \quad (\text{IV.85})$$

ou $\underline{\underline{E}}$ est une matrice tridiagonale symétrique, \vec{S}_e est le vecteur second membre et $\vec{\Theta}$ est le vecteur température.

les systèmes matriciels (IV.83) et (IV.84) sont résolus par un algorithme de gradient conjugué préconditionnée SSOR.

Les équations de la dynamique couplées avec le lagrangien augmenté discrétisées en volumes finis donnent le système linéaire suivant:

$$\begin{pmatrix} \underline{\underline{A}} + r' \underline{\underline{B}}^T \underline{\underline{B}} & \underline{\underline{B}}^T \\ \underline{\underline{B}} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \vec{U} \\ \vec{P} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \vec{f} + r' \underline{\underline{B}}^T \vec{g} \\ \vec{g} \end{pmatrix} \quad (\text{IV.86})$$

ou les éléments de la matrice A et B sont explicités dans la thèse de G.Vinay,2005. r' est le paramètre de Lagrange qui permet d'accélérer la convergence de résolution du système matriciel IV.86. A. Wachs propose de choisir une valeur comprise entre $[10^2, 10^4]$ pour optimiser la convergence du système. \vec{f} et \vec{g} sont les vecteurs second membres explicités également dans la thèse à G.Vinay,2005. Le système ci dessus est résolu par l'algorithme itératif Uzawa/gradient conjugué proposé par Glowinski et al.

IV.5 Étude de l'écoulement d'un fluide viscoplastique dont les paramètres dépendent de la température et des cristaux de paraffine.

L'objectif de l'étude numérique présentée dans ce paragraphe est de montrer qu'un dépôt de paraffine peut se construire à partir de la nouvelle approche proposée dans le paragraphe II-4. Nous nous intéressons donc à l'écoulement d'un fluide viscoplastique incompressible évoluant dans une conduite axisymétrique dont les paramètres rhéologiques sont dépendants de la température et des cristaux de paraffine avec un mécanisme d'enrichissement en paraffines dissoutes près de la paroi. Cette situation simule le transport d'un brut paraffinique subissant un refroidissement pariétal imposé par les conditions thermiques extérieures $\Theta \leq \Theta_{cc}$.

Jusqu'à présent, dans la littérature, il n'existe pas de loi permettant de rendre compte à la fois des effets thermiques et des effets des cristaux de paraffine sur la contrainte seuil ainsi que sur la viscosité plastique. Dans un premier temps, nous les choisissons de manière arbitraire. Le modèle thermodynamique donnant la fraction des paraffines cristallisées en fonction de la température et des paraffines dissoutes est choisi également arbitrairement. Par la suite nous définirons ces paramètres pour le brut considéré grâce à des mesures appropriées détaillées au chapitre V.

- La contrainte seuil dépend arbitrairement de la température et de la fraction de cristaux de paraffine comme suit: $\tau_0(\Theta, C_s) = (\Lambda\Theta + \Psi)C_s + \Gamma.C_s^2$ ou Λ , Ψ et Γ sont des constantes.
- La viscosité plastique suit une loi d'Arrhenius et dépend de la température: $\mu(\Theta) = \mu_0 \exp\left(\frac{E_a}{R}\left(\frac{1}{\Theta} - \frac{1}{\Theta_0}\right)\right)$ ou E_a , R et μ_0 sont respectivement l'énergie d'activation, la constante des gaz parfait et la viscosité de référence à Θ_0 . L'influence des cristaux de paraffine sur la viscosité plastique est négligée dans un premier temps.
- Un modèle thermodynamique arbitraire est utilisé pour déterminer la quantité de paraffine en fonction de la température: $C_s = A.C_l(\Theta^{-2} - \Theta_{cc}^{-2})$ si $\Theta \leq \Theta_{cc}$ ou A est une constante.

La géométrie du problème est décrite dans le paragraphe IV-3, l'écoulement est divisé en deux zones. Dans la première zone de longueur L_e , la température de la paroi de la conduite est égale à celle du fluide tel que $\Theta_{inlet} > \Theta_{cc}$. Dans la seconde zone, la température de la paroi est inférieure à Θ_{cc} .

La longueur de la conduite est choisie telle que : $L < L_{\text{établie}} = \frac{\rho C_f \bar{U} R^2}{\lambda_f}$ afin que le régime stationnaire de la température ne s'établisse pas à la sortie de la conduite. L'écart de température entre le fluide et la paroi de la conduite est fixé à $\Delta\Theta = 15K$. De plus, un profil de vitesse est imposé à l'entrée de la conduite. Le régime d'écoulement est laminaire puisque le nombre de Reynolds est égal à $R_e = 200$.

La figure Fig-IV-5 représente l'évolution du dépôt de paraffine dans la conduite durant 70 heures. Les zones bleues sont les zones non cisailées considérées comme étant le dépôt de paraffine. Notons que le dépôt n'apparaît pas immédiatement. Après quelques heures, le dépôt grossit radialement et axialement avec le temps. Qualitativement, ces résultats sont en adéquation avec les observations expérimentales exposées dans le chapitre III.

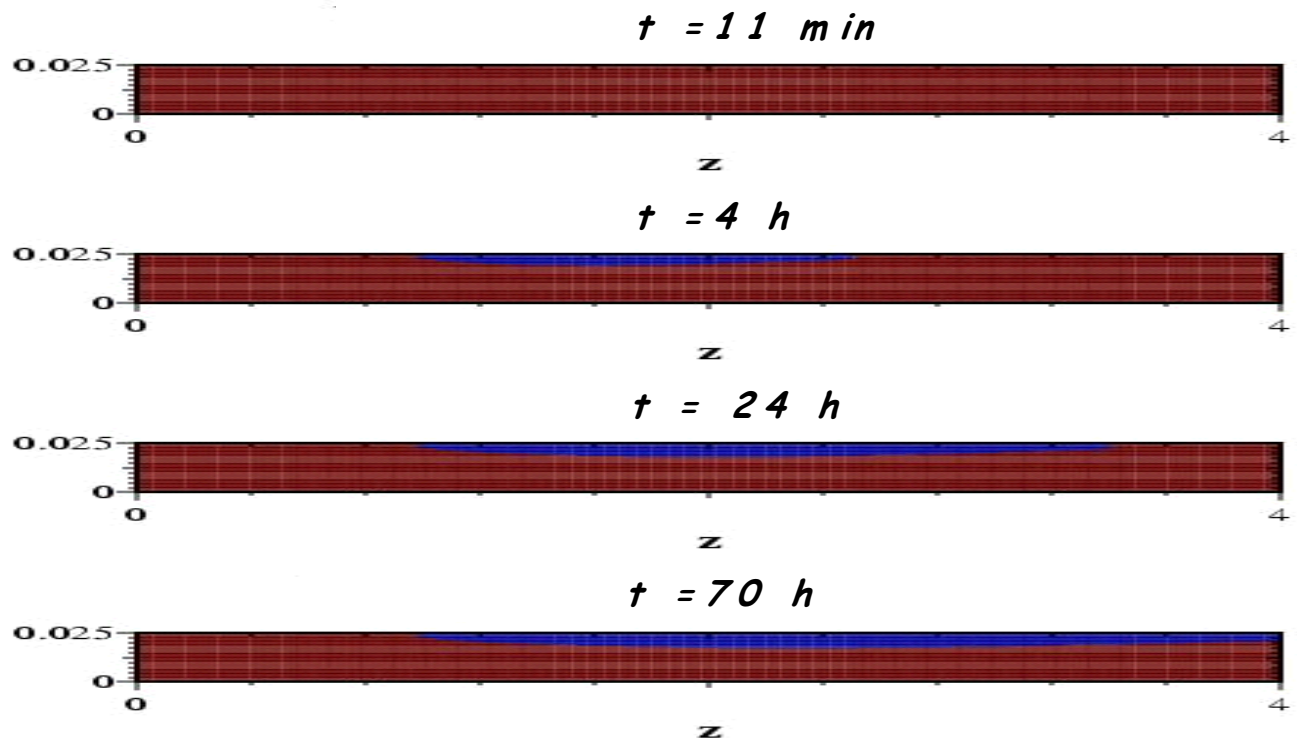


Fig- IV-5:Évolution de l'épaisseur dépôt de paraffine dans la conduite en fonction du temps.

Les profils de vitesse axiale dans différentes sections de la conduite atteints au bout de 70 heures d'écoulement sont représentés sur la figure *Fig-IV-6*. Le fluide entre dans la conduite avec un profil parabolique. Quand le dépôt de paraffine se forme, la section de la conduite diminue. Afin de conserver le débit, la vitesse au centre de la conduite augmente. Notons également que ces profils de vitesse ont une forme en "cloche". Cela s'explique car la réduction de la section de passage du fluide et l'influence de la température et des cristaux de paraffine sur la viscosité apparente impliquent un ralentissement du fluide au voisinage du dépôt et à contrario une accélération de celui-ci au centre de la conduite afin de respecter l'équation de continuité.

Les courbes de la figure IV-7 traduisent l'évolution de la pression le long de la conduite à différents instants. Nous pouvons diviser ces courbes en deux parties quelque soit l'instant. Entre l'entrée de la conduite et la longueur L_e , le fluide s'écoule de manière newtonienne, isotherme et incompressible la pression diminue linéairement le long de la conduite. Dans la seconde zone i.e. de L_e à la sortie de la conduite, la pression diminue de manière non linéaire. Ce résultat n'est pas intuitif. Ce changement de tendance coïncide avec l'apparition du dépôt à la paroi. Pour expliquer ce résultat, nous reprenons les équations de conservation de mouvement en régime permanent :

$$\frac{\partial P}{\partial r} + \frac{\partial \tau_{rz}}{\partial z} = 0 \quad (IV.87)$$

$$\underbrace{\frac{\partial \tau_{rz}}{\partial r} + \frac{\tau_{rz}}{r}}_1 = \underbrace{\rho \left(w(r, z) \cdot \frac{\partial w(r, z)}{\partial z} \right)}_2 - \underbrace{\frac{\partial P}{\partial z}}_3 \quad (IV.88)$$

L'hypothèse généralement faite lors des écoulements "normaux" est que la vitesse axiale ne dépend pas de la longueur de la conduite ainsi le terme 2 de l'équation (IV.88) est nul et dans ce cas, nous aurions une variation linéaire de la pression avec la longueur et une variation linéaire de la contrainte avec le rayon. Dans notre cas, cette dernière hypothèse n'est plus valide car la dépendance de la viscosité en fonction de la température et des cristaux de paraffine implique que la vitesse axiale dans la conduite dépend également de z et ainsi le terme 2 de l'équation (IV.88) n'est pas nul. La variation de la pression et la variation de la contrainte de cisaillement ne sont donc pas linéaires.

Sur cette même courbe, nous constatons que la perte de charge augmente au cours du temps. Cette croissance est rapide au début et ralentit progressivement. Nous avons constaté le même comportement dans les essais effectués dans la boucle LYRE présentés dans le chapitre III.

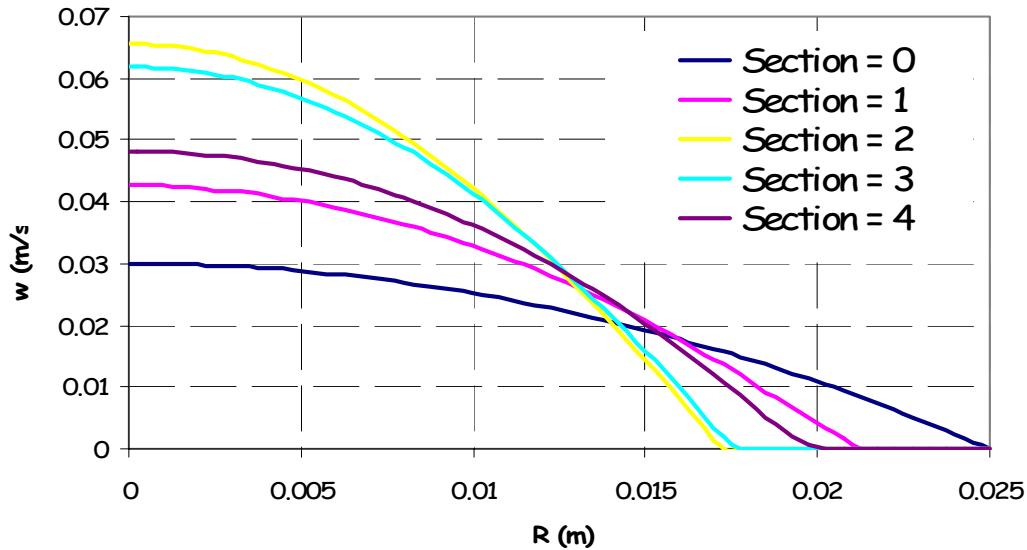


Fig- IV-6:Évolution de la vitesse axiale à différentes sections à l'instant $t=70$ heures.

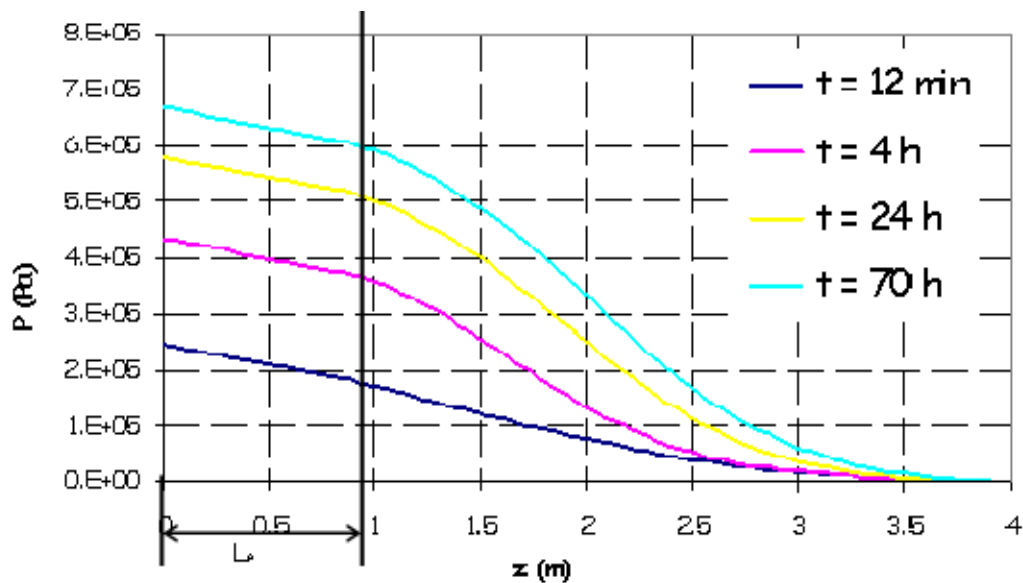


Fig- IV-7:Évolution de la pression le long de la conduite à différents instants.

IV.6 Conclusion:

Dans le chapitre II-4, nous avons imaginé une nouvelle approche basée sur un mécanisme d'enrichissement en proche paroi qui permet de changer le comportement du brut dans cette zone jusqu'à son arrêt. Dans le présent chapitre, nous nous sommes appuyés sur les modèles des écoulements viscoplastiques thermodépendants et thixotropes développés dans le cadre de sa thèse à l'IFP par Vinay, 2005 (encadrement A. Wachs et J.F Agassant) que nous avons adapté à la problématique des dépôts de paraffine en conduite en ajoutant notamment un mécanisme d'enrichissement en paraffine en proche paroi qui est la diffusion moléculaire.

En premier lieu, nous avons mis en évidence la robustesse de la nouvelle version du code "StarWaCS2D" pour gérer des zones non cisailées à la paroi.

Nous avons vu également que, lorsque le brut est paraffinique, la thermodépendance et les effets des cristaux de paraffine sur ces paramètres intrinsèques suffisent pour générer un dépôt à la paroi. Les résultats numériques qualitatifs sont en adéquation avec les résultats expérimentaux détaillés dans le chapitre III: le dépôt de paraffine se forme une fois que la couche en proche paroi est suffisamment enrichie en cristaux de paraffine. Nous constatons également que la perte de charge augmente rapidement dans les premières heures puis cette augmentation ralentit avec le temps.

Nous avons également vu que le changement de rhéologie du brut au cours de l'écoulement implique que la variation axiale de la pression dans la conduite n'est plus linéaire et donc la variation radiale de la contrainte de cisaillement n'est également plus linéaire. Cette conséquence induit que les prédictions par le biais des méthodes simples qui s'appuient sur la linéarité de la contrainte de cisaillement ne sont pas pertinentes.

CHAPITRE V: DÉTERMINATION DES PARAMÈTRES THERMODYNAMIQUE ET RHÉOLOGIQUE DU BRUT PARAFFINIQUE.

V.1 Introduction

L'utilisation du code "StarWaCS2D" pour prédire l'évolution de l'épaisseur du dépôt de paraffine en fonction du temps dans une conduite axisymétrique nécessite la détermination de certains paramètres du brut. Si l'on se réfère au système d'équation développé au chapitre précédent (équations IV-21 à IV-27), cela concerne les grandeurs suivantes: ρ , C_f , λ_f , Θ_{cc} , τ_0 , μ , C_s , C_l et D_m déjà définis dans le chapitre IV.

Dans la littérature, le coefficient de diffusion D_m , comme nous l'avons vu au chapitre II, est généralement un paramètre d'ajustement des modèles de dépôt. Nous n'en parlerons pas ici et verrons par la suite dans le chapitre VI comment nous pouvons le déterminer.

Les paramètres tels que ρ , C_f et λ_f peuvent être déterminés de manière classique et ne jouent pas un rôle fondamental dans l'approche phénoménologique que nous développons. Ils sont de plus peu sensibles aux deux grandeurs sur lesquelles reposent notre approche, la température et la teneur en paraffine.

En revanche, ce n'est pas le cas des paramètres de la loi de comportement et de la fraction cristallisée de paraffine. Nous détaillons dans ce chapitre la méthode expérimentale que nous avons mise au point pour déterminer ces paramètres.

Pour illustrer cela nous utilisons le brut HK des essais réalisés dans la boucle Lyre (Cf Chapitre III).

V.2 Méthodologie de caractérisation du brut

Pour rappel, le mécanisme que l'on cherche à mettre en évidence (représenté par la fig V-1) se base sur le fait que "localement", près de la paroi, le brut va subir conjointement un refroidissement et un "enrichissement" en normale paraffine. Ceci va avoir pour conséquence directe de changer le "comportement" du fluide et la quantité de paraffine "potentiellement" cristallisables dans cette région.

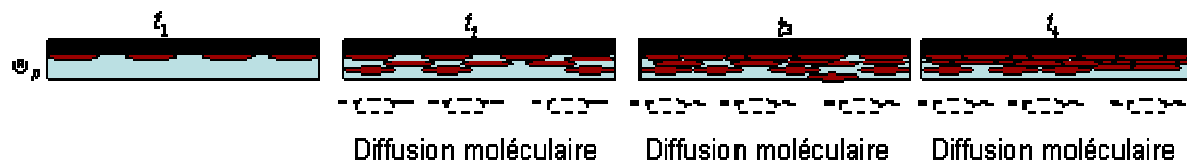


Fig- V-1: Schéma représentant la nature de la couche fluide près de la paroi à différents instants.

Il est donc nécessaire de rendre compte de ces évolutions et de les caractériser. La détermination d'une loi de comportement se fait classiquement à l'aide d'un rhéomètre et la détermination de la fraction cristallisable se fait à l'aide de la DSC (calorimétrie différentielle à balayage). Se pose toutefois le problème dans notre cas de l'obtention des échantillons à caractériser notamment ceux "enrichis en paraffine".

V.2.1 Préparation des échantillons:

Nous utilisons le brut HK dont les principales caractéristiques ont été détaillées dans le chapitre III au cours des essais dans la boucle Lyre.

Dans l'absolu, afin d'être le plus représentatif possible du problème, il faudrait être capable de prélever un échantillon à divers instants en un point d'une conduite où s'écoule le brut et se produit l'enrichissement. En effet, compte tenu de la complexité du phénomène, la quantité et probablement le "type " de paraffine (à chaîne carbonées plus ou moins longue) qui vont migrer et cristalliser dépendent eux même de l'environnement thermique.

Pour contourner cette difficulté, nous enrichissons artificiellement le brut en paraffine; trois possibilités ont été envisagées:

1. utiliser de la paraffine "commerciale".
2. effectuer un "déparaffinage" du brut puis réintroduire cette paraffine de façon sélective.
3. utiliser le dépôt de paraffine créé par le brut.

La première solution présente l'avantage d'être "simple" à réaliser mais présente l'inconvénient d'être très "sélective" sur le type de paraffine rajoutée. En effet la paraffine que l'on trouve dans le commerce a un spectre très étroit en terme de nombre de carbones, ce qui est peu représentatif de ce qui va se passer au sein d'un brut.

La seconde solution serait au contraire plus représentative mais nécessite de faire appel à des techniques de traitement "lourdes".

La troisième solution est un bon compromis puisque représentative du brut (le dépôt étant formé à partir de ce dernier) et disponible puisque des essais de dépôt en boucle ont été réalisés.

Nous avons donc utilisé le dépôt obtenu et prélevé lors de l'essai "Test-72h-283K" effectué sur la boucle LYRE.

La figure Fig-V-2 représente le protocole utilisé pour préparer les échantillons qui seront caractérisés par la suite. Soit m_1 la masse du brut HK et m_2 la masse de dépôt de paraffine. Pour préparer un échantillon enrichi d'une certaine quantité de normales paraffines, on mélange m_1 et m_2 et on obtient un échantillon de masse $m=m_1+m_2$ qu'on choisit égale à 10 g. Le mélange est chauffé à une température de 343 K (suffisante pour faire fondre tout le dépôt) en remuant à l'aide d'un barreau magnétique pendant 40 minutes. Le tableau V-1 ci dessous récapitule les différents échantillons préparés.

A noter que les pourcentages indiqués dans la dernière colonne du tableau V-1 ne représentent en aucun cas la teneur en paraffine de l'échantillon. En effet le brut lui même en contient une certaine quantité à l'origine et le dépôt n'est pas uniquement constitué de paraffine. Nous verrons par la suite comment déterminer la teneur en normales paraffines de chacun des échantillons.

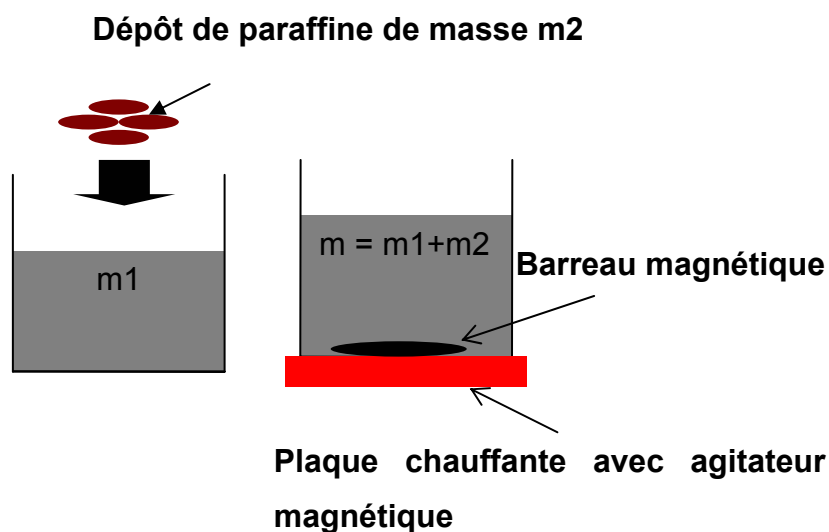


Fig- V-2: Mode opératoire pour la préparation de l'échantillon enrichi en dépôt de paraffine.

Nom échantillon	m_1 (g)	m_2 (g)	m (g)	% masse de dépôt rajouté
EchHK1	10	0	10	0 %
EchHK2	8	2	10	20%
EchHK3	7	3	10	30%
EchHK4	6	4	10	40%
EchHK5	4	6	10	60%
EchHK6	3	7	10	70%

Tableau V-1: Récapitulatif des échantillons préparés avec différentes quantités de dépôt de paraffine.

V.2.2 Analyse thermodynamique par DSC des échantillons.

Afin de déterminer les courbes d'évolution de la quantité de cristaux des normales paraffines en fonction de la température pour les différents échantillons, nous utilisons la méthode de la calorimétrie différentielle à balayage.

La calorimétrie différentielle à balayage (DSC, pour Differential Scanning Calorimetry) est une technique qui permet de mesurer les flux de chaleur entre un échantillon et une référence soumise à une rampe de température. Ce flux thermique est directement proportionnel à la différence des capacités calorifiques de l'échantillon et de la référence à une température donnée. Une transition de phase comme la cristallisation va se traduire par un pic dont la surface est proportionnelle à l'enthalpie de transformation. Dans notre cas, à partir de cette mesure d'enthalpie, on remonte à la fraction précipitée des normales paraffines comme expliqué ci dessous pour l'échantillon "EchHK1".

L'appareil utilisé est un calorimètre TA-Instruments DSC 2920-Modulated DSCea. L'étalonnage est réalisé avec un corps pur, l'indium (température de fusion 429,75 K, enthalpie de fusion 28450 J.kg⁻¹). La masse de l'échantillon est de l'ordre de quelques milligrammes. La vitesse de balayage est de 5°C/min entre 353 K et 173 K.

La courbe bleue de la Fig-V-3 représente le flux de chaleur par unité de masse détecté par DSC lors du refroidissement de l'échantillon du brut HK. Le pic de précipitation des normales paraffines est entouré en noir sur cette même figure, il est compris entre la température $\Theta_1 = 294.7K$ et $\Theta_{\min} = 248K$.

La courbe rouge sur la Fig-V-3 représente l'évolution de la chaleur dégagée par unité de masse normalisée par la chaleur totale par unité de masse dégagée lorsque toutes les normales paraffines ont cristallisé. Elle s'écrit comme suit:

$$Area\% = \frac{\int_{\Theta_1}^{\Theta} flow\ heat\ d\Theta}{\int_{\Theta_1}^{\Theta_{\min}} flow\ heat\ d\Theta} \times 100 \quad (V-1)$$

$$A_{\max} = \frac{\int_{\Theta_1}^{\Theta_{\min}} flow\ heat\ d\Theta}{v_T}$$

Où $A(J/g)$, $A_{\max}(J/g)$ et $v_T(K.s^{-1})$ sont respectivement la quantité de chaleur par unité de masse dégagée lors de la cristallisation des normales paraffine à la température Θ , la chaleur dégagée par unité de masse lorsque l'ensemble des normales paraffines ont cristallisé et la vitesse de refroidissement imposée à notre échantillon lors de l'essai.

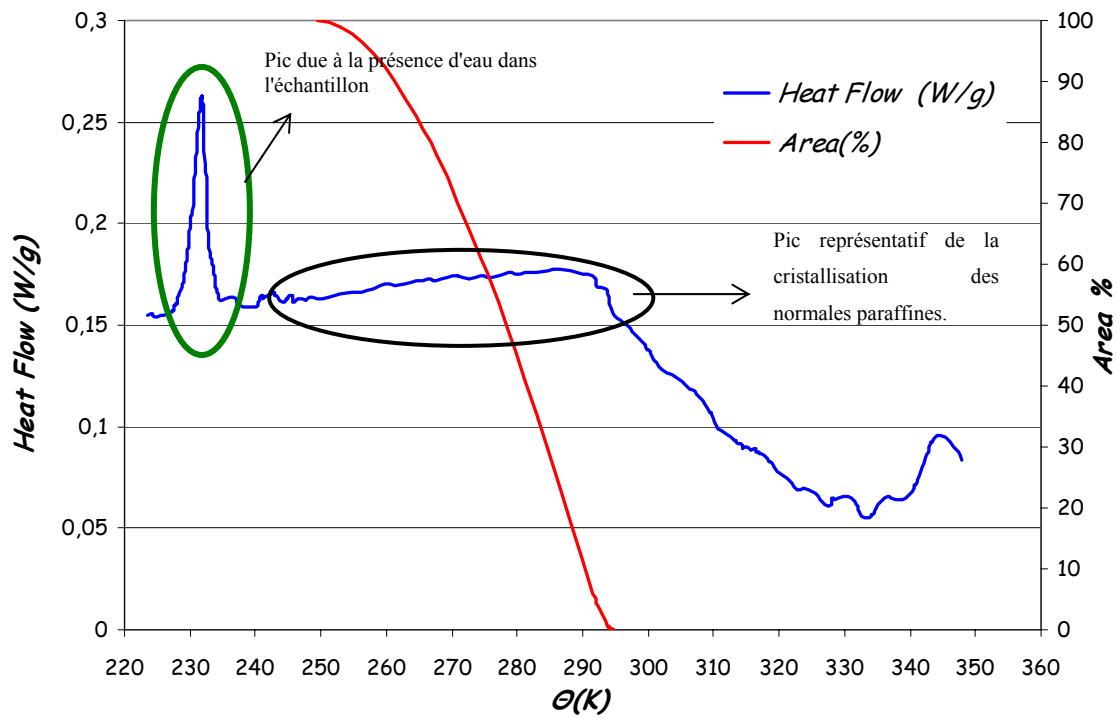


Fig- V-3: Courbes obtenues par DSC pour le brut HK.

Déduisons l'énergie nécessaire, $H(J)$, qu'il a fallu fournir pour faire cristalliser les paraffines au sein de notre échantillon de masse, $m_{éch}$ à la température Θ :

$$H = A \times m_{éch} = \frac{Area\% \times A_{max}}{100} \times m_{éch} \quad (V-2)$$

Soit $\Delta H_{précipitation}(J/g)$ l'enthalpie massique de cristallisation des normales paraffines supposée la même pour toutes les normales paraffines. Cette dernière hypothèse est relativement forte. Cette enthalpie est de l'ordre de $160(J/g)$. On en déduit la masse des normales paraffines cristallisées, m_s , lors de notre essai de DSC

$$m_s = \frac{H}{\Delta H_{précipitation}} = \frac{Area\% \times A_{max}}{100 \cdot \Delta H_{précipitation}} \times m_{éch} \quad (V-3)$$

Finalement la fraction cristallisée, $F_c(\%masse)$, s'écrit comme suit :

$$F_c(\%masse) = \frac{m_s}{m_{éch}} \times 100 = \frac{H}{\Delta H_{précipitation}} = \frac{Area\% \times A_{max}}{\Delta H_{précipitation}} \quad (V-4)$$

La courbe ainsi obtenue permet de déterminer deux paramètres pour l'échantillon concerné:

- La température de cristallisation commençante qui est déterminée à partir de l'intersection de la courbe avec l'axe des abscisses ($\Theta_{cc} = \Theta|_{Cs=0}$) A titre d'exemple pour le brut HK sur le graphe V-4 $\Theta_{cc} = 294.69 K$.
- la teneur "maximale" en paraffine "cristallisable" qui est déterminée par la valeur asymptotique de Cs obtenu à basse température. A titre d'exemple pour le brut HK cette valeur est de l'ordre 4.2% en masse. A remarquer que ceci est cohérent avec le fait que le brut HK contient 30% de brut H qui contient approximativement 14% de normales paraffines et 70% de solvant qui ne contient pas de paraffine.

Les autres grandeurs obtenues à partir de ces mesures DSC sont regroupées dans le tableau V-2.

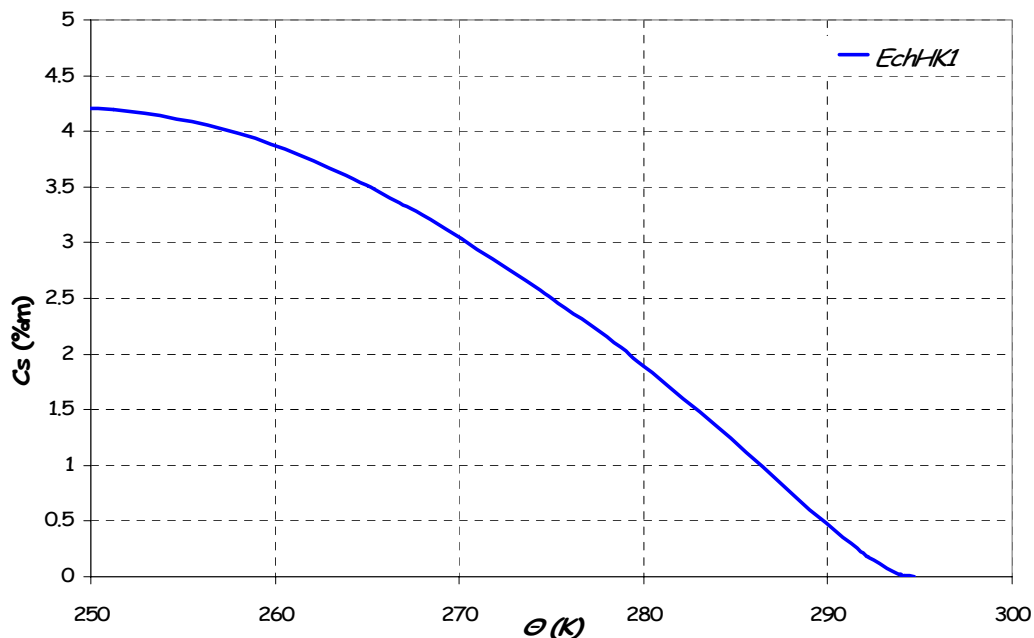


Fig- V-4: Évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines de "EchHK1" en % masse en fonction de la température.

$\Delta H_{précipitation} (J / g)$	$A_{max} (J / g)$	Limite d'intégration		Θ_{cc}
		$\Theta_1 (K)$	$\Theta_{min} (K)$	
160	6.8	294.7	248	294.7

Tableau V-2: Récapitulatif des valeurs numériques utilisées pour tracer la courbe de la Fig-V-4.

V.2.3 Protocole d'essai pour la mesure rhéologique.

Les mesures rhéologiques sont effectuées à l'aide d'un rhéomètre Anton Paar MCR 501. Une chambre de régulation de température via un système de Peltier est utilisée afin de rendre la température homogène dans l'échantillon et donc d'éviter les problèmes de dépôt lors de la mesure. On a utilisé la géométrie plan-plan avec une surface striée pour la partie supérieure afin de limiter le glissement (Cf.Fig-V-5).

Le schéma de la figure Fig-V-6 représente les profils thermiques et de cisaillement subis par l'échantillon au cours de la caractérisation afin d'obtenir sa courbe d'écoulement à une température donnée, Θ_p . Ainsi, nous pourrions en déduire les paramètres rhéologiques à cette température.

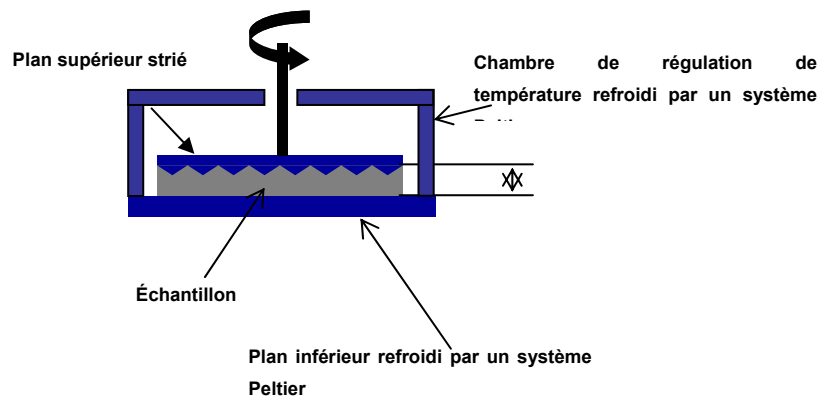


Fig- V-5: Schéma de principe de la géométrie utilisée pour la mesure rhéologique.

Avant chaque essai, nous homogénéisons l'échantillon à l'aide d'un barreau magnétique et d'une plaque chauffante portée approximativement à 363 K afin d'effacer son histoire thermique et mécanique. La durée de cette opération est d'environ vingt minutes. Ensuite nous passons à la phase I du protocole d'essai décrit sur le schéma de la figure V-6. Cette phase dure dix minutes et consiste à déposer quelques millilitres d'échantillon dans l'entrefer de la géométrie du rhéomètre qui est chauffé à une température Θ_i . Dans un pipeline, cette étape correspond à l'instant initial où la couche fluide près de la paroi est encore à la température d'extraction Θ_i . Puis nous passons à l'étape II de ce protocole. Il s'agit de refroidir l'échantillon à raison de 2K/min jusqu'à atteindre la température cible, Θ_p , en le cisillant à un

taux de cisaillement constant, $\dot{\gamma}_p$. Dans un pipeline, cette opération correspondrait à la phase que subit une particule fluide en écoulement soumise à un refroidissement pour atteindre la température de paroi, Θ_p . Elle est soumise à un cisaillement d'environ $\dot{\gamma}_p = 32 \frac{Q}{\pi D^3}$ ou Q et D sont respectivement le débit et le diamètre du pipeline. La phase III du protocole d'essai correspond à une phase de stabilisation thermique et mécanique (structuration ou déstructuration éventuelle de réseau de cristaux de normales paraffines) comme c'est le cas dans un pipeline. Enfin, l'établissement de la courbe d'écoulement est obtenu au cours de la phase IV du protocole d'essai. L'échantillon est maintenu à la température, Θ_p , pendant qu'il subit une rampe décroissante en cisaillement et qu'une mesure de l'évolution de la contrainte de cisaillement est effectuée.

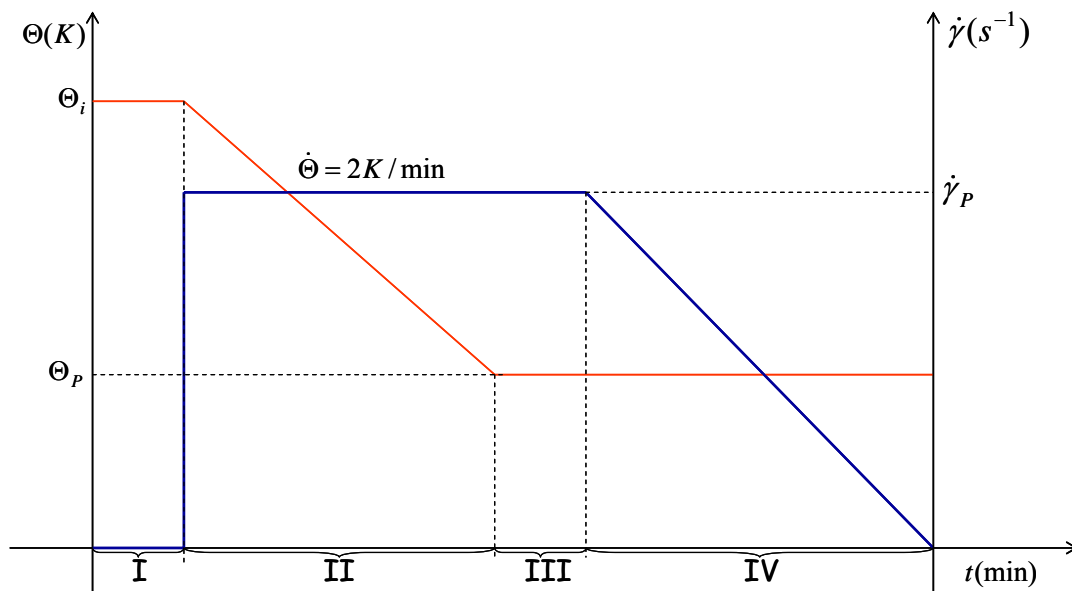


Fig- V-6: Protocole d'essai pour obtenir une courbe d'écoulement avec un refroidissement dynamique.

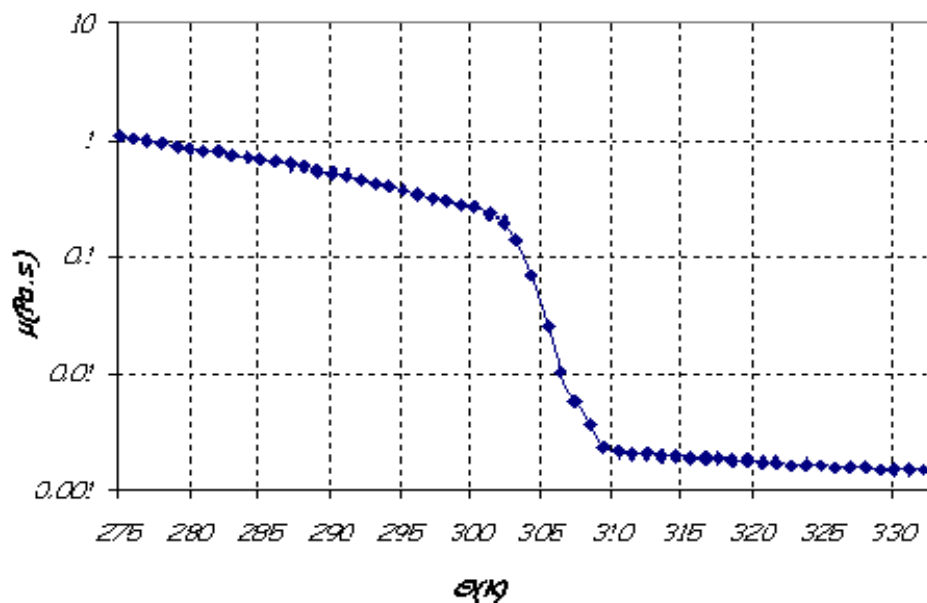


Fig- V-7: Exemple de viscosité apparente fonction de la température obtenu durant la phase II du protocole.

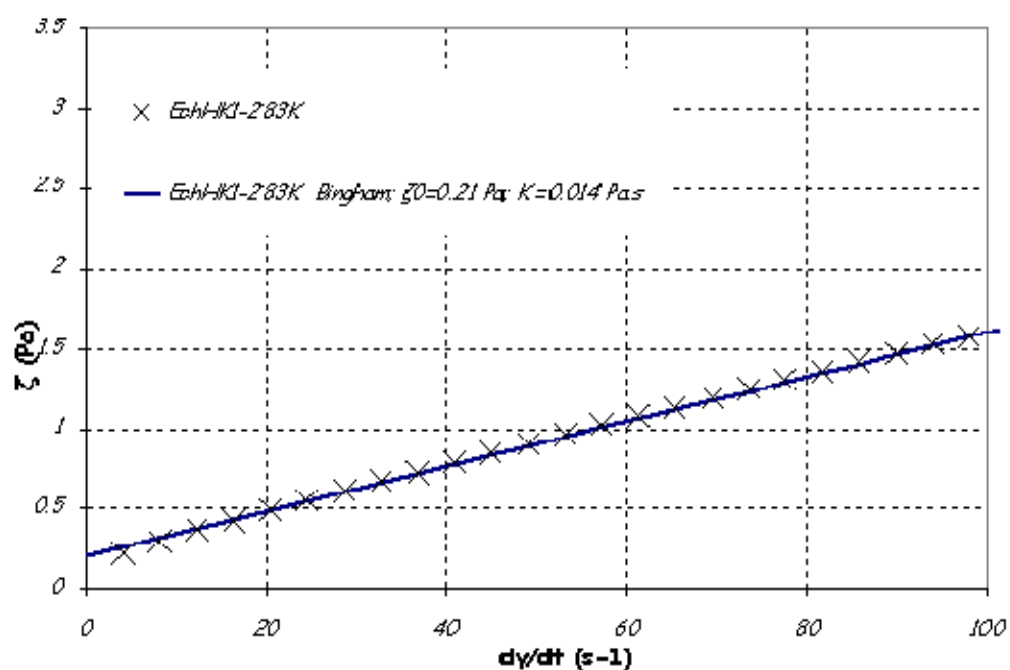


Fig- V-8: Exemple de courbe d'écoulement obtenu durant la phase IV du protocole.

Ce protocole nous permet de déterminer deux courbes:

- Au cours de la phase II du protocole on obtient une courbe de "viscosité apparente" en fonction de la température. Le type de courbe obtenue est donné sur la figure V-7
- au cours de la phase IV du protocole on obtient la courbe d'écoulement de l'échantillon. Un exemple de courbe est montré sur la figure V-8. Une contrainte seuil et une viscosité plastique de l'échantillon peuvent être déterminées à partir d'une loi rhéologique de type Bingham. La contrainte seuil sera prise comme l'extrapolation des points mesurés vers le cisaillement nul. La pente des points mesurés près des cisaillements faibles nous donne la viscosité plastique. A titre d'illustration le modèle de Bingham et les points mesurés sont tracés sur la même figure V-8 pour un échantillon.

V.3 Résultats et discussions

V.3.1 Évolution de la fraction cristallisée en fonction de la température et de l'enrichissement.

Nom échantillon	Θ_{cc} (K)
EchHK1	294
EchHK2	301
EchHK3	307
EchHK4	315
EchHK5	318
EchHK6	320

Tableau V-3: Récapitulatif des Θ_{cc} obtenues

Le protocole décrit au paragraphe V-2-2 a été appliqué aux six échantillons réalisés (voir tableau V-1). Nous obtenons pour tous les échantillons les courbes de l'évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines en fonction de la température.

Un test de reproductibilité a été effectué sur l'échantillon "EchHK2". Les deux courbes obtenues sont présentées sur la figure V-9. Comme on peut le constater, les résultats sont tout à fait répétables. Sur la détermination de la température de cristallisation commençante, la

différence entre les deux essais est d'environ 0,5%. Pour la teneur maximale en paraffine cristallisable, l'écart est d'environ 5%

Les courbes de la variation de la fraction des normales paraffines cristallisées en fonction de la température pour les six échantillons sont tracées sur la figure Fig-V-10.

- Ce que l'on note tout d'abord c'est que l'enrichissement agit de manière sensible sur la température de cristallisation commençante. Le tableau V-3 regroupe les valeurs de Θ_{CC} obtenues pour tous les échantillons.

Ce résultat n'est pas forcément intuitif. En effet, en rajoutant tout le temps le même type de paraffine il n'y avait a priori aucune raison pour que la "première paraffine à cristalliser " apparaisse à température plus élevée si ce n'est que la quantité rajoutée permet d'augmenter le seuil de détection des paraffines les plus longues.

- Quelque soit la courbe, lorsque la température diminue la quantité des cristaux de paraffine augmente pour tendre vers des valeurs asymptotes, $C_{s\max}|_i$ ou i varie de 1 à 6 représentant respectivement les échantillons EchHK1, EchHK2, EchHK3, EchHK4, EchHK5 et EchHK6.

La quantité des normales paraffines ajoutée en pourcentage masse, $\Delta C_s(\%m)$, dans chaque échantillon est égale à:

$$\Delta C_s(\%m) = C_{s\max}|_i - C_{s\max}|_1 \times \frac{m_1}{m} \quad (V-5)$$

Dans le tableau V-4, nous récapitulons la quantité de paraffine ajoutée dans chaque échantillon ainsi que les valeurs asymptotiques de paraffines cristallisés.

A partir des valeurs calculées dans le tableau V-4, nous pouvons établir une corrélation entre la fraction cristallisée, la quantité de paraffine ajoutée et la température. Nous limitons notre analyse pour les températures comprises entre $[294K; 275K]$. La courbe de la figure Fig-V-11 représente l'évolution de la fraction de normales paraffines cristallisées en fonction de la quantité de paraffine ajoutée pour différentes températures. Nous constatons, pour une température fixée, que la quantité de paraffine cristallisée augmente de manière linéaire avec la quantité de paraffine ajoutée par enrichissement. Nous pouvons donc écrire la relation suivante:

$$C_s(\Theta, \Delta C_s) = a(\Theta)\Delta C_s + C_s^0(\Theta) \quad (V-6)$$

Avec $a(\Theta)$ le coefficient directeur de la variation de la quantité de paraffine cristallisée et $C_s^0(\Theta)$ la variation de la quantité cristallisée lorsque l'enrichissement est nul autrement dit c'est la variation de la quantité de paraffine cristallisée du brut HK en fonction de la température.

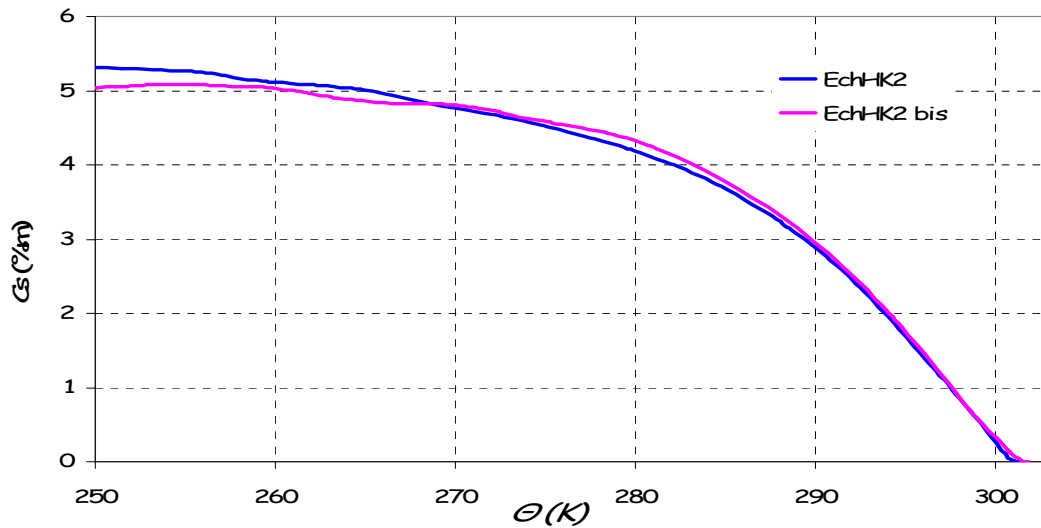


Fig- V-9: Reproductibilité de l'évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines en fonction de la température pour l'échantillon EchHK2.

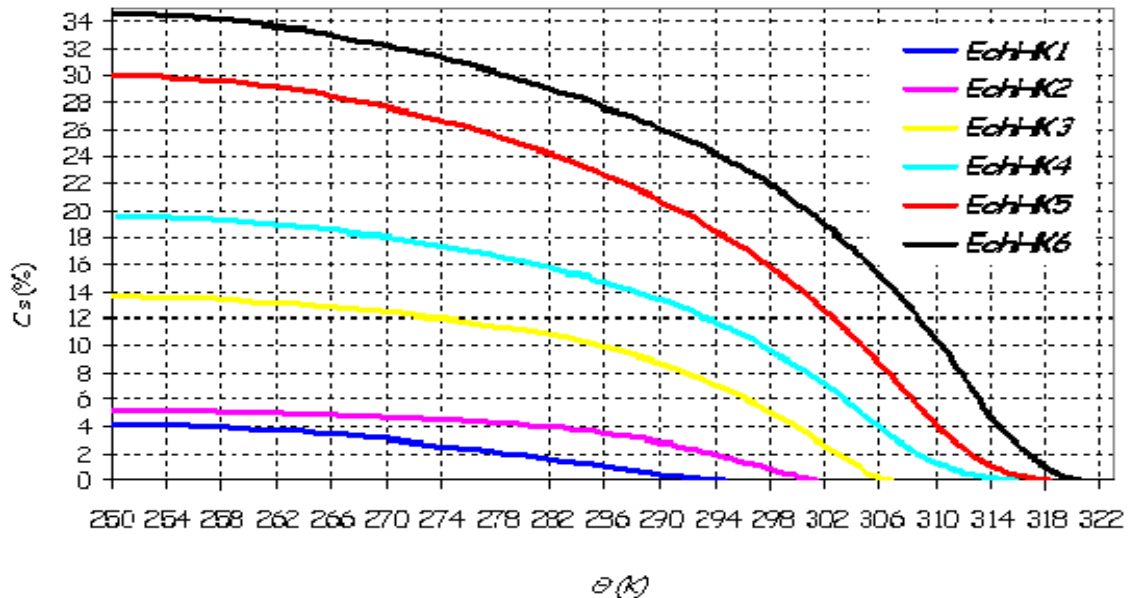


Fig- V-10: Évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines en fonction de la température pour tous les échantillons.

Nom échantillon	$m_1(g)$	$m(g)$	$C_{s \max} _i$	ΔC_s	$m_{\text{rajoutées}}(g)$
EchHK1	0	10	4.2 %	0 %	0
EchHK2	8	10	5.2 %	1.8 %	0.18
EchHK3	7	10	14 %	11 %	1.1
EchHK4	6	10	19 %	16.5%	1.65
EchHK5	4	10	30%	28.3%	2.8
EchHK6	3	10	34.5%	33.2%	3.3

Tableau V-4: Récapitulatif des quantités de normales paraffines ajoutées.

La figure Fig-V-12 montre que la variation de $C_s^0(\Theta)$ en fonction de la température est linéaire dans l'intervalle de température défini précédemment et suit la corrélation suivante:

$$C_s^0(\Theta) = -0.0013 \times \Theta + 0.393 \quad (\text{V-7})$$

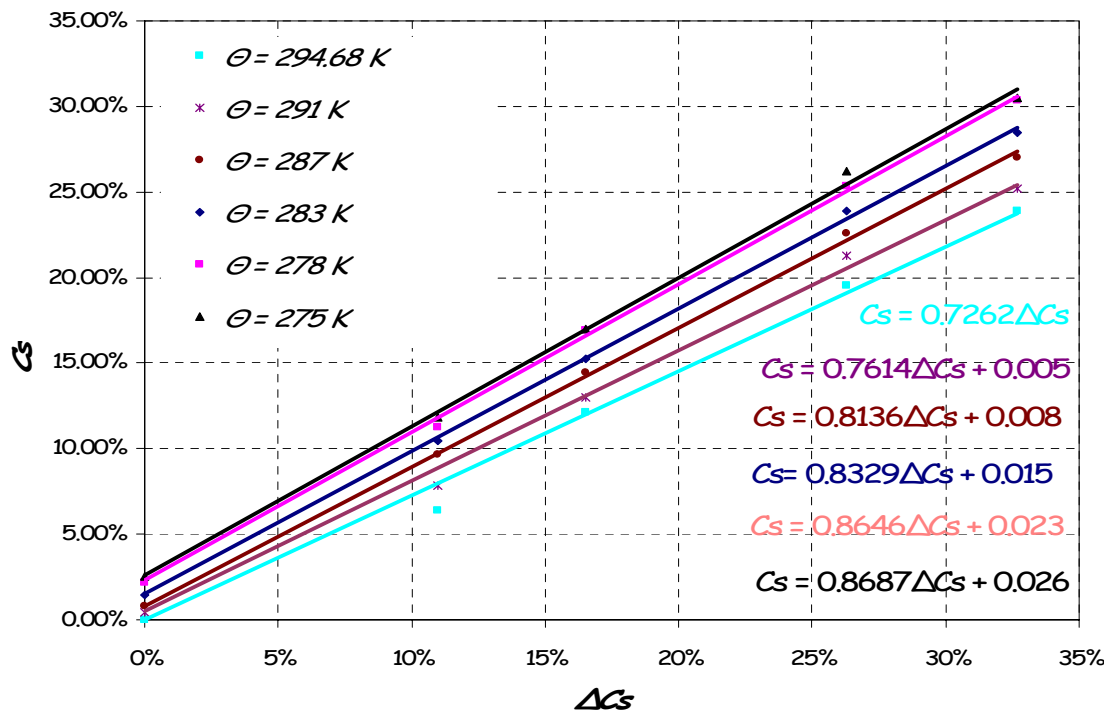


Fig- V-11: Évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines en fonction de l'enrichissement pour différentes températures

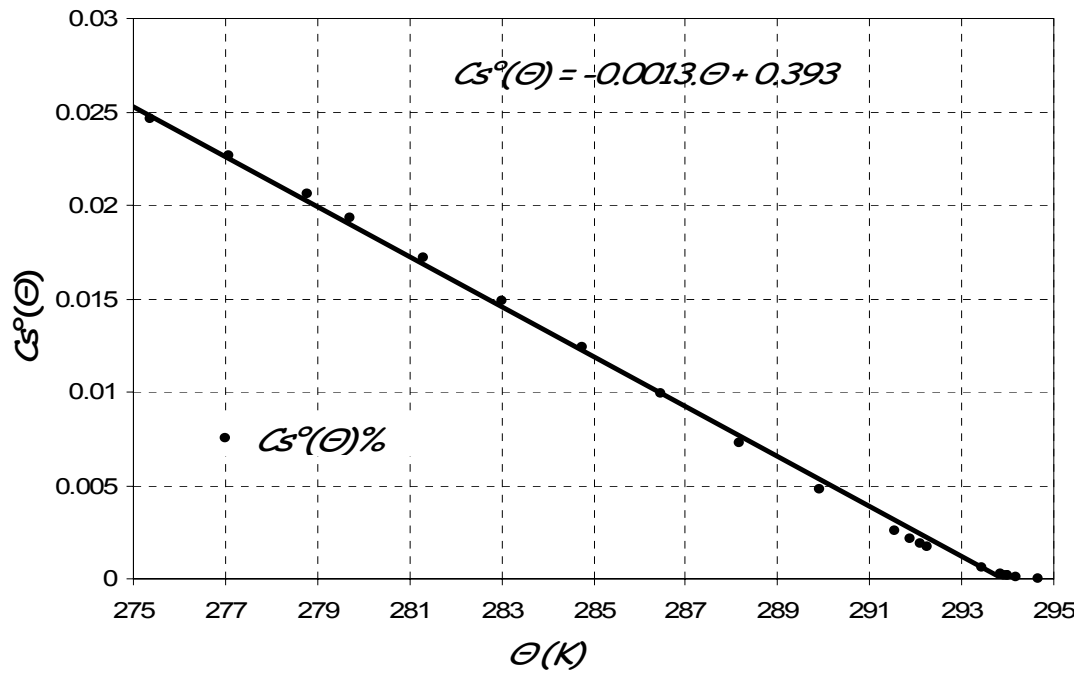


Fig- V-12: Évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines en fonction de la température pour un enrichissement nul.

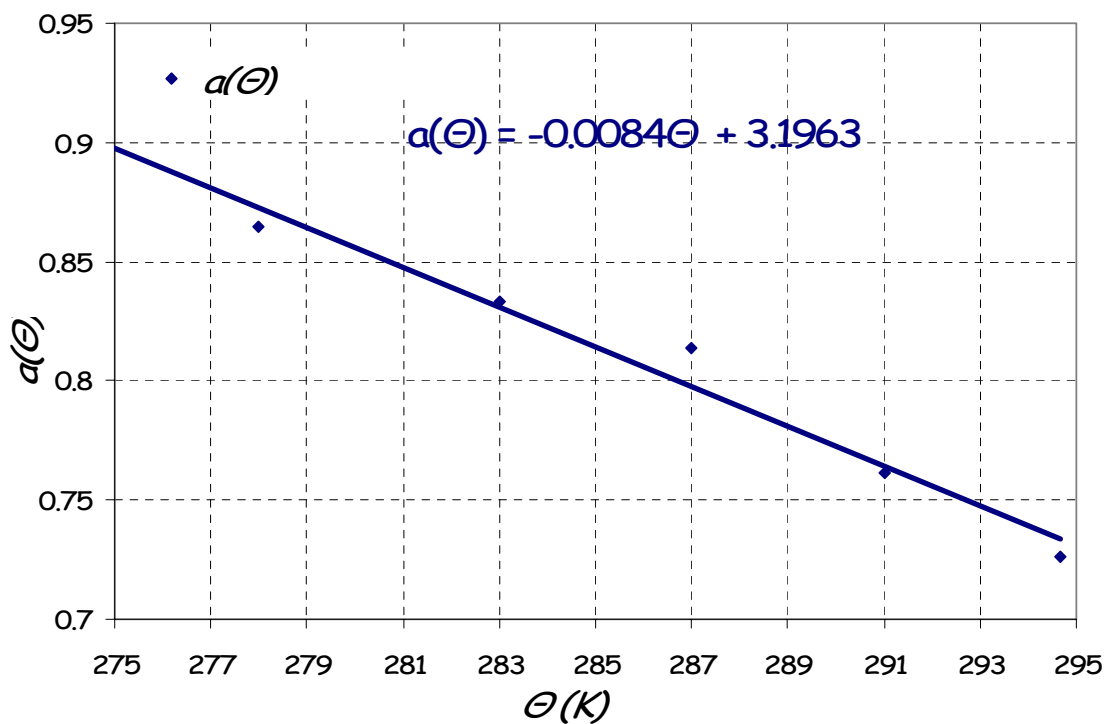


Fig- V-13: Évolution du coefficient directeur de l'équation en fonction de la température.

La figure Fig-V-13 représente l'évolution du coefficient directeur $a(\Theta)$ en fonction de la température. La corrélation linéaire ci dessous représente de manière satisfaisante cette évolution:

$$a(\Theta) = -0.0084 \times \Theta + 3.197 \quad (\text{V-8})$$

Ainsi pour un enrichissement donné et une température donnée, nous pouvons avoir la quantité de normales paraffines qui cristallisera avec les corrélations (V-6) à (V-8). A titre d'exemple, si la couche fluide est enrichie de 16.5% (EchHK4) en paraffine dissoute à la température de 278 K, nous obtenons via les corrélations (V-6) à (V-8) 17.4% de fraction de paraffine cristallisée. Sur les courbes de la figure Fig-V-10, nous obtenons 16.5% de fraction cristallisée. Nous faisons une erreur de l'ordre de 4%.

V.3.2 Évolution de la viscosité apparente en fonction de la température.

Afin de caractériser les échantillons EchHK1, EchHK2, EchHK3, EchHK4, EchHK5 et EchHK6, deux températures cibles ont été choisies: $\Theta_p = 275K$ et $\Theta_p = 283K$. Ce choix a été guidé par les essais réalisés dans le boucle Lyre (voir chapitre III). Le cisaillement choisi pour tous les essais a été fixé à $\dot{\gamma}_p = 100s^{-1}$. Cela correspond approximativement au cisaillement à la paroi d'une conduite de diamètre $D = 0.05m$ généré par l'écoulement d'un fluide newtonien à un débit de $Q = 5m^3/h$, qui correspond au débit utilisé durant les essais de la boucle Lyre (Chapitre III). Quelques soient les échantillons, la température initiale a été fixée à $\Theta_i = 333K$. Rappelons que chaque échantillon a été chauffé au préalable à 363K afin d'assurer une bonne fusion de la "paraffine rajoutée" et effacer toute histoire thermomécanique qu'aurait pu subir l'échantillon. Le tableau V-5 récapitule les différents essais effectués et leurs paramètres.

Nom test	$\dot{\gamma}_p (s^{-1})$	$\dot{\Theta} (K \text{ min}^{-1})$	$\Theta_i (K)$	$\Theta_p (K)$
EchHK1-275K	100	2	333	275
EchHK2-275K	100	2	333	275
EchHK3-275K	100	2	333	275
EchHK4-275K	100	2	333	275
EchHK4-275K bis	100	2	333	275
EchHK5-275K	100	2	333	275
EchHK6-275K	100	2	333	275
EchHK1-283K	100	2	333	283
EchHK2-283K	100	2	333	283
EchHK3-283K	100	2	333	283
EchHK4-283K	100	2	333	283
EchHK5-283K	100	2	333	283
EchHK6-283K	100	2	333	283

Tableau V-5:Récapitulatif des paramètres d'essais utilisés pour obtenir les courbes d'écoulement.

La phase II du protocole d'essai nous donne les courbes des viscosités apparentes de chaque échantillon. La mesure des viscosités apparentes des échantillons EchHK5 et EchHK6 n'était pas possible à cause de problème de glissement. Par la suite, nous présentons uniquement les mesures effectuées sur les quatre premiers échantillons (Fig-V-14). Tout d'abord on constate que, pour tous les échantillons, on retrouve le profil caractéristique pour un brut paraffinique. En effet à "haute température" la viscosité apparente varie faiblement avant de subir un "saut" important sur quelques degrés avant un nouveau plateau à basse température. La plage de température où l'on observe la très forte variation de viscosité correspond à la zone où les cristaux de paraffine commencent à se former de manière conséquente. On peut donc déterminer une température de cristallisation commençante à partir de ces mesures rhéologiques. Les valeurs obtenues pour chaque échantillon ont été reportées dans le tableau V-6. Dans ce même tableau elles sont comparées aux températures de cristallisation commençantes déterminées par DSC. Tout d'abord ce que l'on constate, c'est que, comme pour la DSC, les Θ_{cc} augmentent au fur et à mesure que l'on enrichit le brut en normales paraffines. Ceci permet donc de confirmer les premières mesures. Ensuite, on peut remarquer

que les écarts entre la détermination par DSC et au rhéomètre sont relativement faibles quelque soit la teneur en paraffine, ce qui conforte encore toutes les mesures. Finalement, on peut noter que les courbes obtenues à 275K et à 283K se confondent ce qui nous assure d'une reproductibilité de la température de cristallisation commençante et de la viscosité apparente.

	EchHK1	EchHK2	EchHK3	EchHK4
Θ_{cdsc} (K)	294.7	301.7	306.4	315.8
Θ_{crheo} (K) à 275K	295	304.3	309.5	311.5
Θ_{crheo} (K) à 283K	295	304.3	309.5	311.5

Tableau V-6:Températures de cristallisation commençante déterminées par DSC et par mesure rhéologique pour les quatre échantillons.

Un test de reproductibilité a été effectué sur l'échantillon EchHK4-275K. Les courbes de la figure Fig-V-15 montrent que la mesure de la variation de la viscosité apparente en fonction de la température est relativement reproductible. Un léger écart peut être observé dans la zone de plus forte variation, correspondant à l'apparition des cristaux de paraffine. Toutefois si l'erreur commise sur la viscosité apparente peut être importante en revanche, pour la détermination de la température de cristallisation commençante qui nous intéresse, l'erreur est faible (moins de 1%).

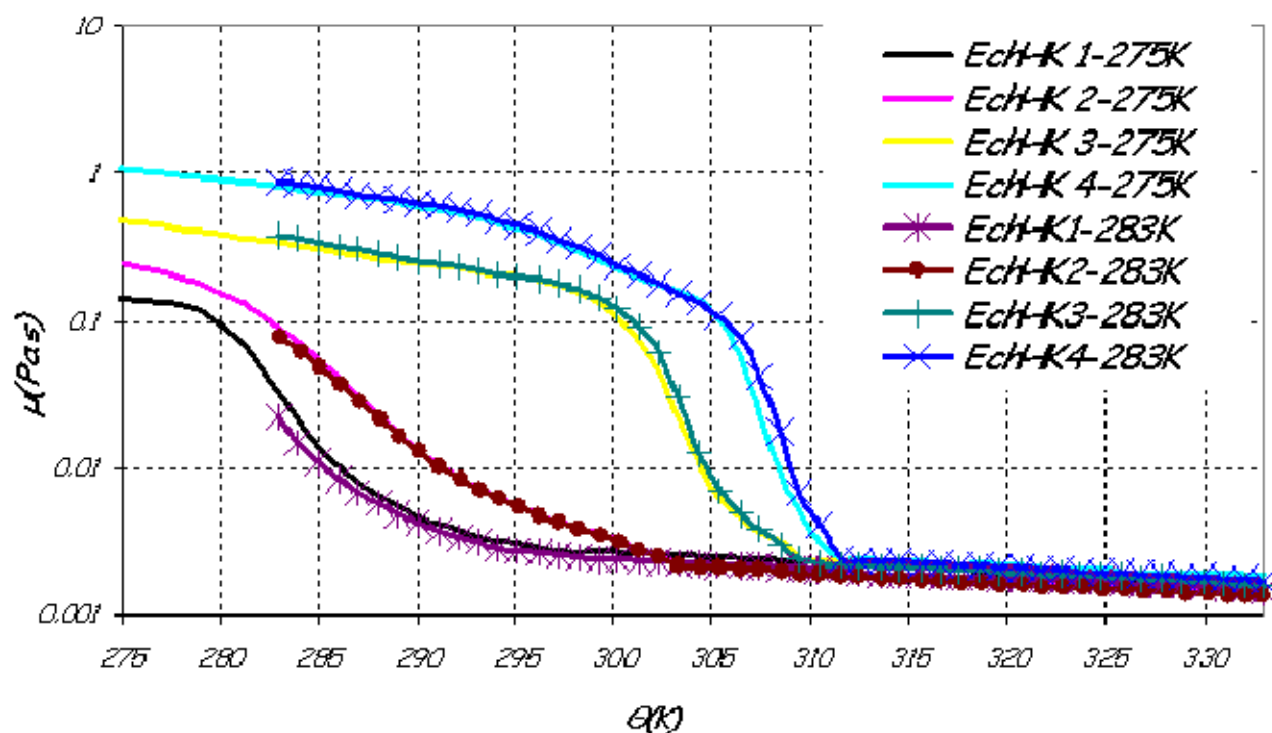


Fig- V-14: Évolution de la viscosité apparente pour les quatre échantillons.

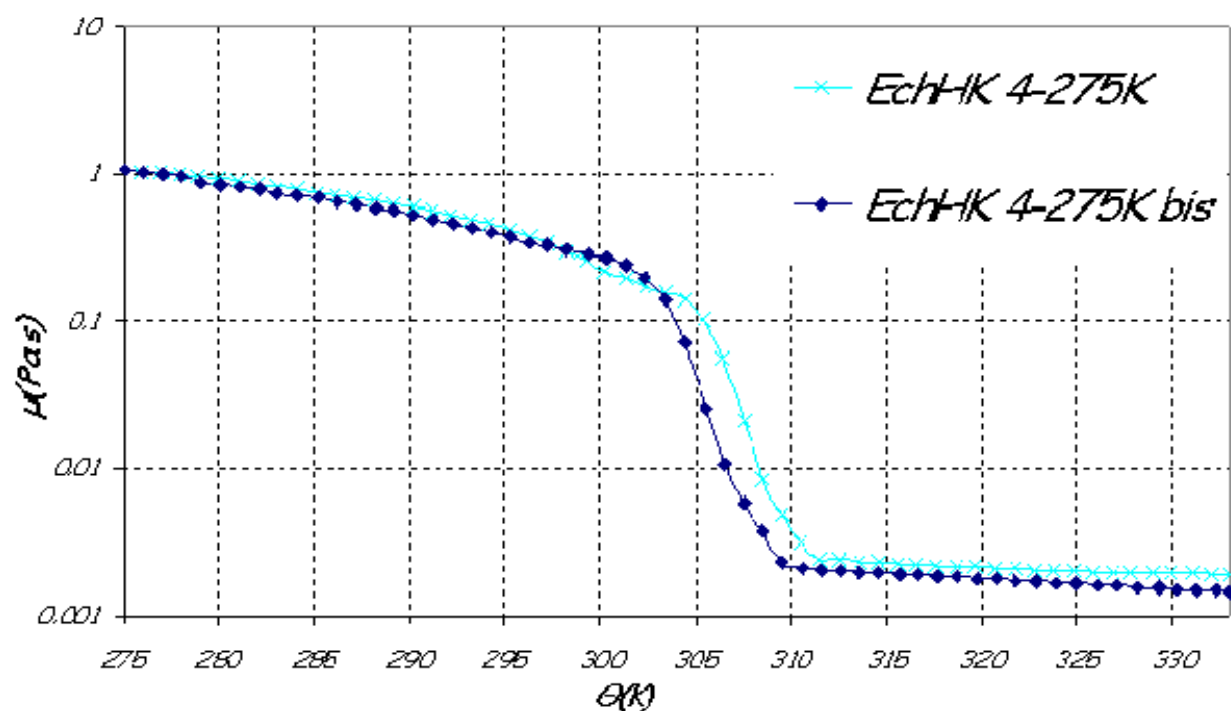


Fig- V-15: Reproductibilité de la viscosité apparente pour l'échantillon EchHK4.

V.3.3 Évolution de la contrainte seuil en fonction de la fraction de paraffine cristallisée et de la température.

La figure Fig-V-16 représente les courbes d'écoulement des quatre échantillons préparés précédemment ainsi que les modèles de Bingham associés, à une température égale à 275K. Nous constatons que, quelque soit l'essai, le comportement de Bingham représente de manière satisfaisante le comportement de ces échantillons. Nous notons également que la contrainte seuil mesurée pour chaque échantillon augmente avec l'enrichissement. Cela peut s'expliquer par le fait qu'à une température fixée la quantité de cristaux de paraffine qui apparaît dans les échantillons EchHK1, EchHK2, EchHK3 et EchHK4 augmente graduellement du fait de l'enrichissement (Cf.Fig-V-10). En conséquence, ces résultats rhéologiques confortent notre approche phénoménologique: plus la couche de brut près de la paroi de la conduite est enrichie en paraffine, plus sa contrainte seuil augmente.

La figure Fig-V-17 représente les courbes d'écoulement des échantillons EchHK1, EchHK2, EchHK3 et EchHK4 ainsi que les modèles de Bingham qui leur sont associés à la température 283K. Nous pouvons faire les mêmes constatations que pour les essais à 275K à l'exception près que les échantillons EchHK1 et EchHK2 ont un comportement proche de celui d'un fluide newtonien.

Les courbes de la figure V-18 représentent l'évolution de la contrainte seuil en fonction de la quantité de paraffine qui cristallise et ce pour les deux températures cibles 283 K et 275 K. Les fractions cristallisées sont obtenues à partir des courbes de DSC. Les contraintes seuil sont déduites des corrélations de Bingham représentées sur les figures V-16 et V-17 .

Comme on peut le constater sur la figure V-18, les deux jeux de données peuvent être approchés par une corrélation de type exponentielle reliant la fraction cristallisée à la tension seuil par une relation de la forme:

$$\tau_0(\Theta, C_s) = A(\Theta)e^{B(\Theta)C_s} \quad (V-9)$$

Où $A(\Theta)$ et $B(\Theta)$ sont des coefficients fonction de la température. Afin de déterminer des lois de variation pour ces coefficients, une étude expérimentale plus exhaustive comprenant notamment plus de températures cibles aurait été nécessaire. Toutefois pour estimer l'évolution du coefficient $A(\Theta)$, comme première approximation, nous pouvons considérer

que la contrainte seuil au voisinage de la température de cristallisation commençante est faible voire négligeable ainsi la formule (V-10) corrèle bien $A(\Theta)$ d'après la courbe de la figure V-19. Nous utilisons une fonction linéaire sur l'intervalle de température $[294K; 275K]$ pour $B(\Theta)$. Ces deux coefficients sont donnés par les relations V-10.

$$A(\Theta) = 0.0013 \times e^{\left(33150 \times \left(\frac{1}{\Theta} - \frac{1}{294}\right)\right)} \text{ et } B(\Theta) = 2.15 \times \Theta - 583.5 \quad (\text{V-10})$$

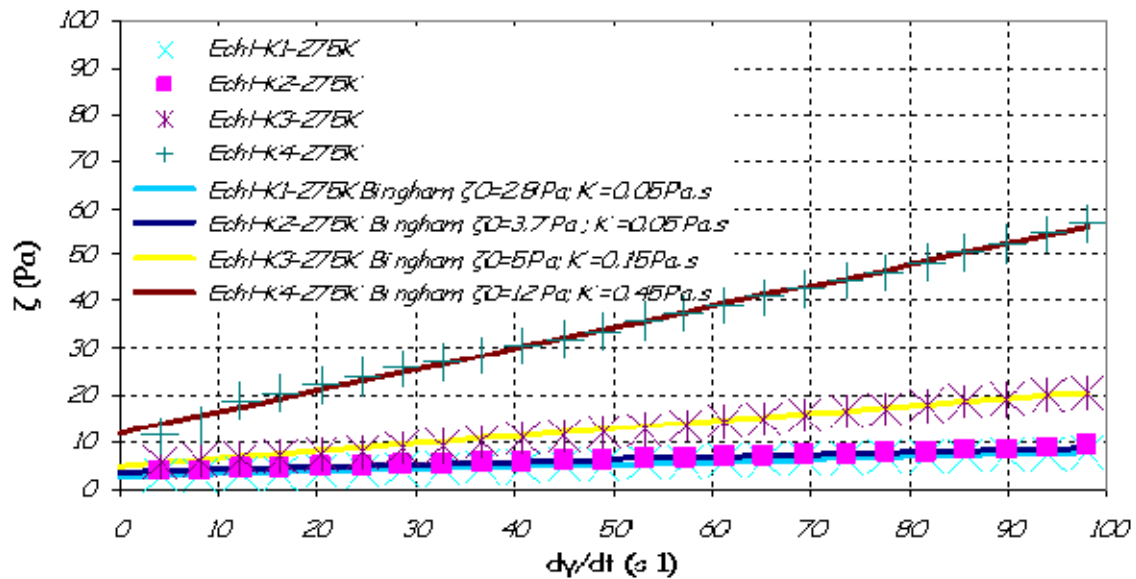


Fig- V-16: Courbes d'écoulement des quatre échantillons à 275 K

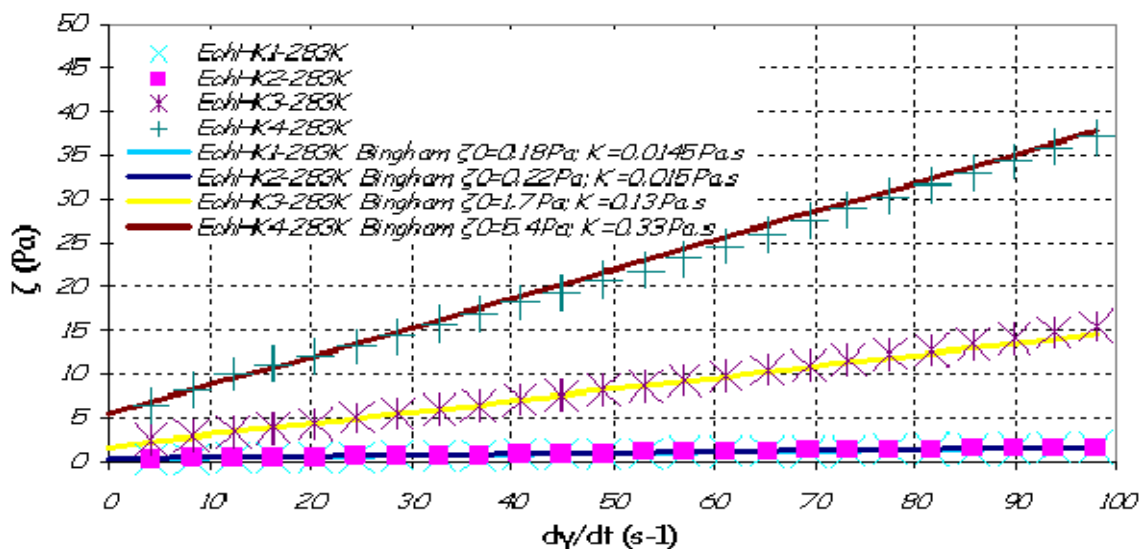


Fig- V-17: Courbes d'écoulement des quatre échantillons à 283K.

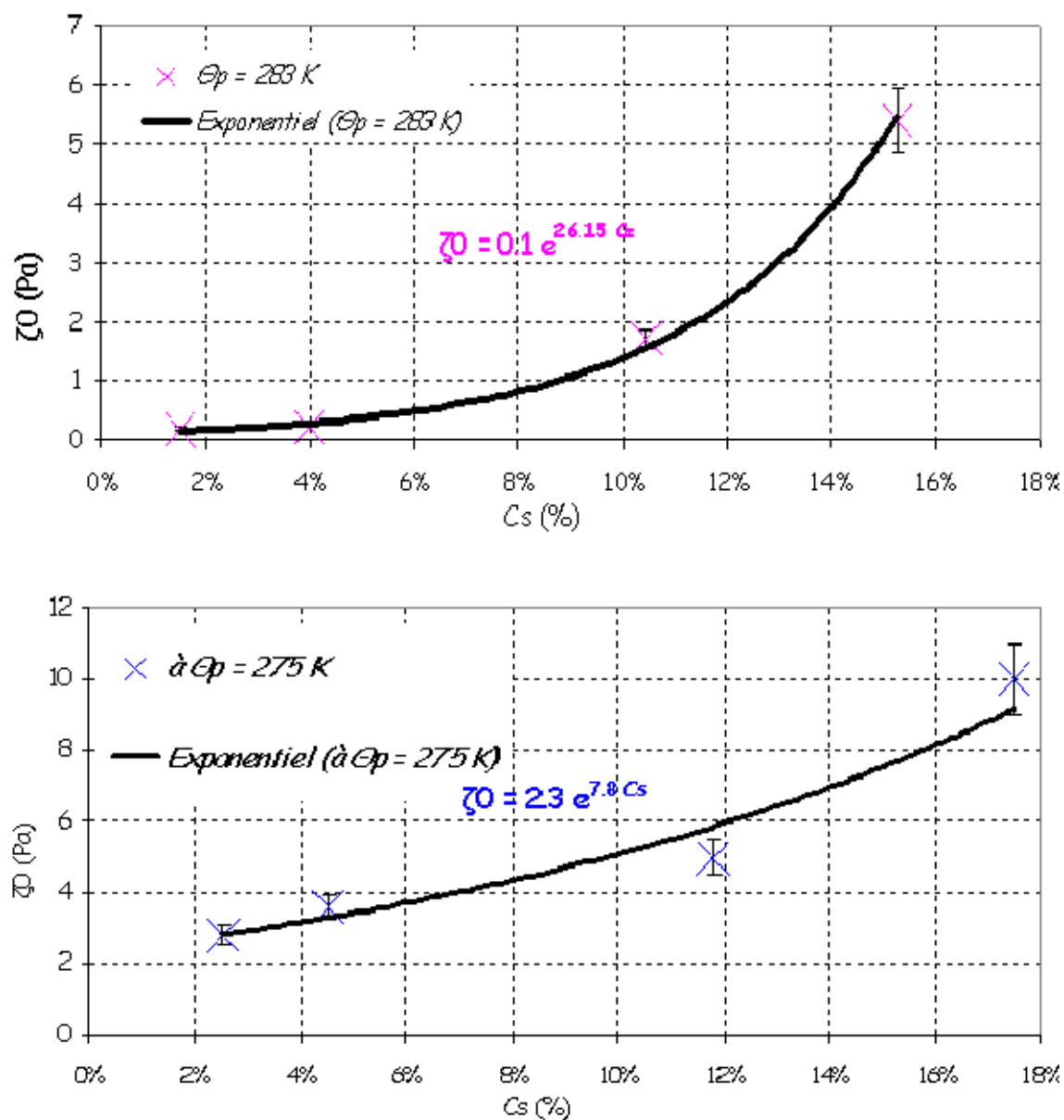


Fig- V-18: Évolution de la contrainte seuil vs de la quantité de cristaux cristallisée à 283 K et à 275 K.

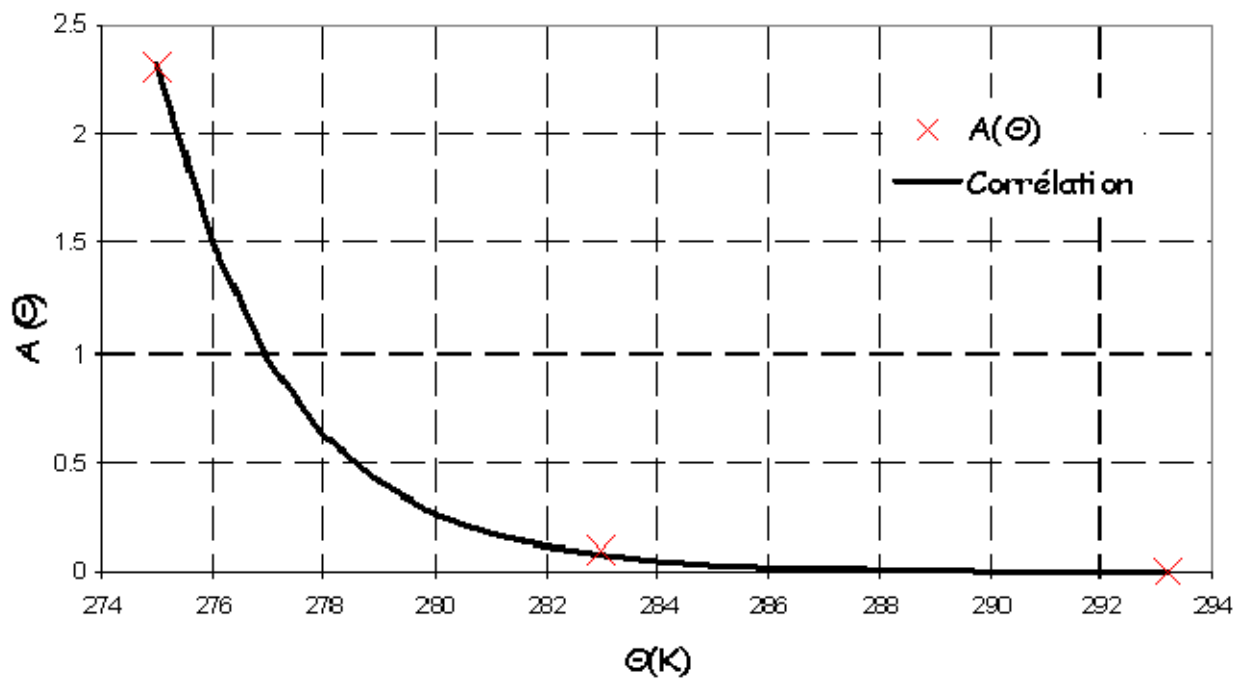


Fig- V-19: Évolution du coefficient $A(\Theta)$ en fonction de la température.

V.3.4 Évolution de la consistance en fonction de la fraction cristallisée et de la température.

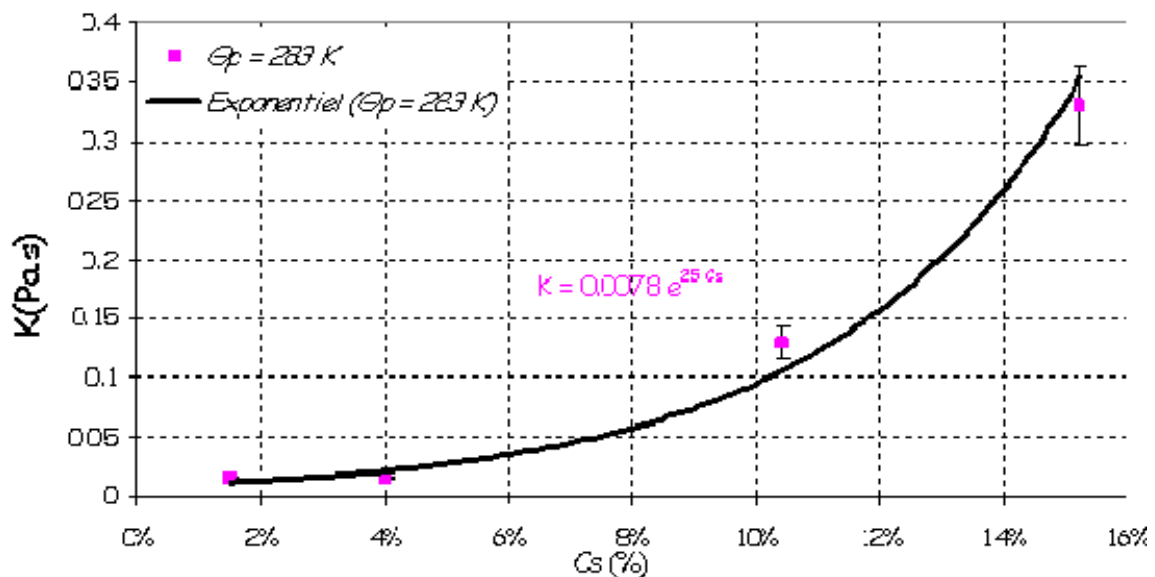


Fig- V-20: Évolution de la viscosité plastique en fonction de la quantité de cristaux cristallisée à 283 K.

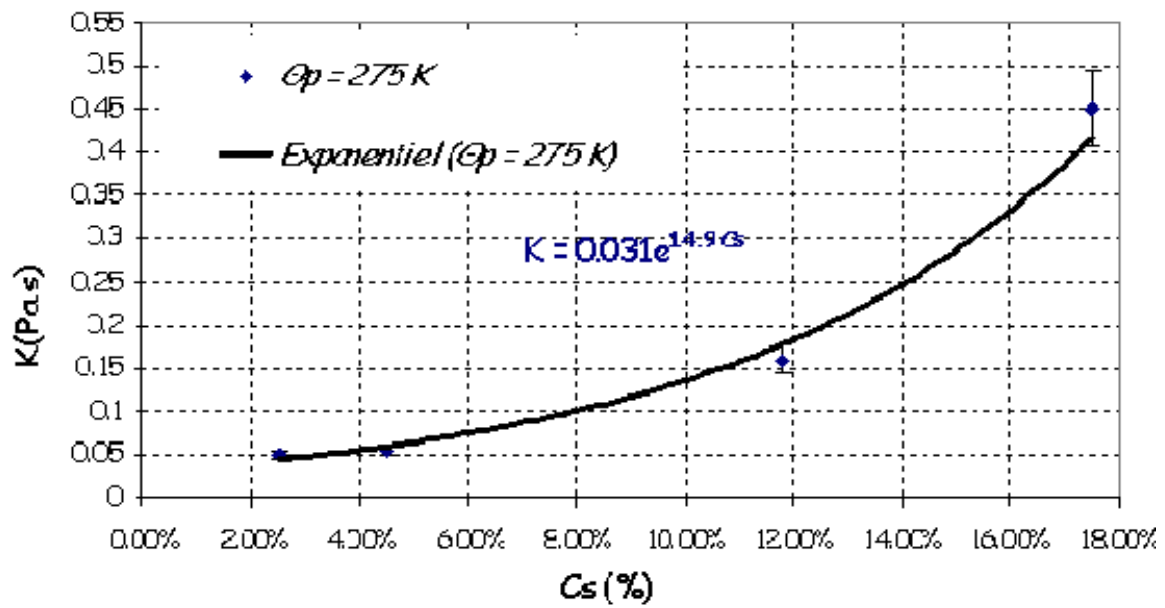


Fig- V-21: Évolution de la viscosité plastique en fonction de la quantité de cristaux cristallisée à 275 K.

Nous avons tiré des corrélations de Bingham présentées précédemment les valeurs de la viscosité plastique des quatre échantillons EchHK1, EchHK2, EchHK3 et EchHK4. L'évolution de celle ci en fonction de la fraction cristallisée à la température 283K est présentée sur la figure Fig-V-19. Nous constatons que, plus la quantité en paraffine cristallisée est importante plus la viscosité plastique est grande. La corrélation ci dessous permet de représenter correctement cette évolution:

$$K = 0.007 \times e^{25C_s} \quad (V-11)$$

La figure V-20 représente l'évolution de la viscosité plastique en fonction de la fraction cristallisée à la température 275K. Nous pouvons faire la même remarque que précédemment à savoir que la viscosité plastique varie de manière exponentielle avec la fraction cristallisée:

$$K = 0.031 \times e^{14.9C_s} \quad (V-12)$$

Comme pour la contrainte seuil, la température influence sensiblement la consistance puisque les corrélations (V-13) et (V-14) sont différentes. Cependant nous pouvons écrire que la viscosité plastique varie comme suit :

$$K(\Theta, C_s) = A'(\Theta) e^{B'(\Theta)C_s} \quad (V-13)$$

Ou $A'(\Theta)$ et $B'(\Theta)$ sont fonction de la température. Comme première approximation, nous allons choisir deux fonctions linéaires sur l'intervalle de température $[294K; 275K]$.

V.4 Conclusion

Nous avons vu au dans ce chapitre comment obtenir les paramètres d'entrée du modèle développé au chapitre IV, à partir de mesures expérimentales en calorimétrie différentielle à balayage et en rhéomètre. Nous avons utilisé le dépôt de paraffine récupéré lors des essais dans la boucle Lyre présentés dans le chapitre III pour enrichir le brut HK afin d'approcher le comportement de la couche fluide près de la paroi de la conduite. En analysant par DSC des échantillons avec plusieurs enrichissements nous avons pu établir des corrélations thermodynamiques qui nous permettent de déterminer la quantité de normales paraffines qui cristallisent en fonction de l'enrichissement et de la température.

Des analyses rhéologiques ont été menées sur le brut HK ainsi que sur les échantillons enrichis en normales paraffines. Dans un premier temps, nous avons montré que la température de cristallisation commençante de chaque échantillon peut être déterminée de manière satisfaisante par la méthode rhéologique et qu'elles sont en accord avec les mesures par DSC. De plus, nous avons démontré que la viscosité apparente dépend clairement de la température et de la quantité de paraffine cristallisée. A partir des courbes d'écoulement, on a pu montrer que le comportement de chaque échantillon peut être approché par une loi de Bingham. La contrainte seuil et la viscosité plastique dépendent à la fois de la température et de la quantité de normales paraffines cristallisées. Il a été établi que ces deux grandeurs intrinsèques du brut varient de manière exponentielle avec la quantité de paraffines cristallisées. Des corrélations en fonction de la température ont été proposées afin de les déterminer à une température donnée.

Finalement, ces analyses thermodynamiques et rhéologiques nous donnent l'évolution de trois paramètres d'entrée parmi ceux nécessaires à l'utilisation du modèle numérique que nous avons exposé dans le chapitre IV. Toutefois il faut noter que ces lois sont propres au brut HK et qu'il faut les rétablir lors de chaque investigation du comportement d'un nouveau brut.

CHAPITRE VI: UNE EXPÉRIENCE MODÈLE PERMETTANT DE RECRÉER LES DÉPÔTS DE PARAFFINE

Les essais effectués sur la boucle Lyre nous ont permis de faire les premières observations et de les relier au processus de construction d'un dépôt de paraffine. L'utilisation de ce type d'installation présente l'avantage d'être le plus représentatif possible de la situation réelle. Toutefois, la contrainte principale de ce dispositif est sa lourdeur de mise en oeuvre. En effet pour être "suffisamment représentatif" en terme d'échelle, le diamètre de la conduite a été fixé à 0.05m ce qui implique ensuite des longueurs d'établissement de couches limites (hydrodynamique et thermique) "suffisantes" pour que l'écoulement soit développé. La conséquence est la mise en oeuvre de volumes importants (500litres) de fluides et des contraintes opérationnelles associées fortes. Ces contraintes (et leur coûts) nous auraient limité pour faire une étude "exhaustive" de notre problème en faisant varier un nombre important de paramètres et d'essais associés. C'est la raison pour laquelle nous avons cherché à concevoir une installation expérimentale capable de recréer des dépôts de paraffine dans des conditions aussi réalistes que possibles, tout en contrôlant la température et le cisaillement et d'une mise en oeuvre "plus simple" que la boucle Lyre. Cette installation va nous permettre d'observer et de suivre l'évolution temporelle de la construction de ce dépôt aussi simplement que possible tout en ayant la possibilité de faire varier plusieurs paramètres du problème.

A notre connaissance, il existe principalement trois types d'installations de déposition de paraffine sous écoulement à savoir des boucles réduites, un appareil appelé "coldfinger" et un système dit de Couette cylindrique (noté C.C par la suite). Les principales difficultés concernent le suivi temporel de la construction du dépôt. En effet le caractère souvent "opaque" du fluide rend difficile une "observation visuelle". La plupart des propriétés physiques du dépôt et du brut associé ne font pas apparaître de contraste évident permettant de distinguer l'un de l'autre. C'est pourquoi les principales mesures sont effectuées par

interruption de l'essai, démontage, séparation de l'huile du dépôt, observation et quantification du dépôt par pesée.

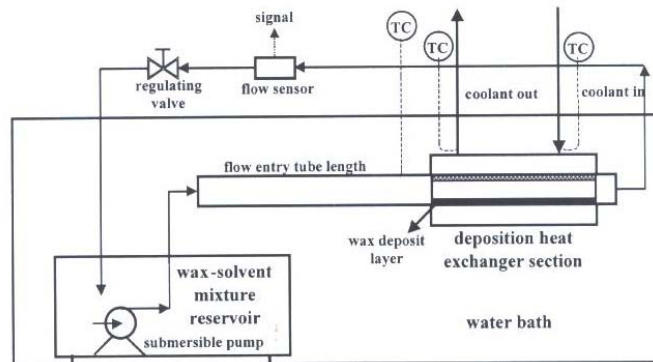


Fig- VI-1: Schéma de principe d'une boucle de laboratoire.

Le principe de fonctionnement des boucles réduites (encore plus réduites que la boucle Lyre) est relativement simple (Cf.Fig-VI-1), il consiste à faire circuler, en boucle fermée, un brut paraffinique avec une température initiale supérieure à la température de cristallisation commençante, en maintenant la paroi d'une portion de la conduite à une température inférieure à Θ_{cc} . Un gradient de température radial est donc créé dans la conduite et ainsi une des conditions d'apparition est respectée. C'est le principe de fonctionnement de la boucle Lyre et donc les avantages et les inconvénients de ce type dispositif sont les mêmes que ceux évoqués pour cette dernière.

Le schéma de principe de l'appareil "coldfinger" est présenté sur la figure Fig-VI-2. Un cylindre creux est connecté à un système de circulation d'eau qui permet de réguler sa température. Ce cylindre est placé dans un réservoir où il y a du brut paraffinique et un barreau magnétique. L'ensemble de ce système est plongé dans un "bain thermostaté" qui a pour but de réguler la température du brut. La mise en mouvement du brut dans le système cylindre/réservoir est généré par la rotation du barreau magnétique. La formation du dépôt commence lorsque la température du cylindre intérieur est inférieure à Θ_{cc} .

L'avantage de cet appareil par rapport aux boucles d'essais réduites réside dans sa simplicité de mise en oeuvre et dans sa capacité à être démonté pour les mesures d'épaisseur de dépôt. De plus la quantité de brut nécessaire pour l'essai peut être relativement faible par rapport aux boucles. Cependant l'écoulement produit dans le réservoir par l'agitation du barreau

magnétique est assez mal contrôlé et connu. La détermination du cisaillement et de la contrainte de cisaillement au niveau du dépôt est donc difficile à estimer.

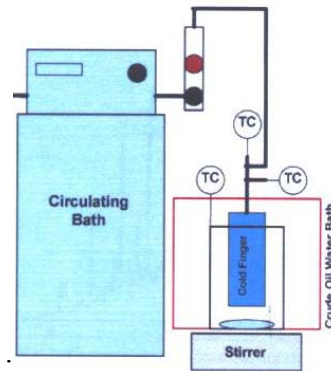


Fig- VI-2: Schéma de principe de l'appareil "Coldfinger" tiré de Jennings et al. 2005.

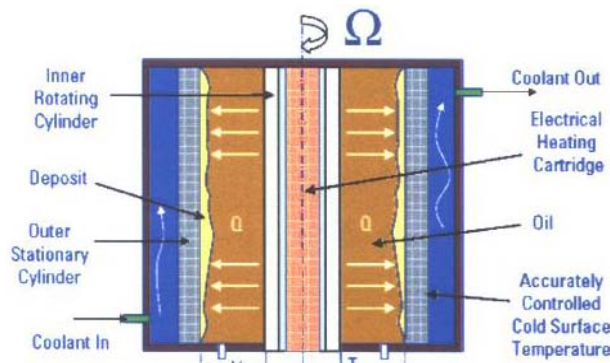


Fig- VI-3: Schéma de principe de l'appareil couette cylindrique tiré de Zougari et al. 2006.

Récemment, est apparu dans la littérature (Zougari et al, 2006) un troisième type d'installation. Cet appareil est inspiré des rhéomètres à géométrie couette cylindrique qui présentent l'avantage de contrôler le cisaillement et la contrainte de cisaillement au sein de l'entrefer. La figure Fig-VI-3 représente le schéma de principe de cet appareil qu'ils sont les seuls, à notre connaissance, à avoir développé pour des problèmes de dépôt de paraffines. Le cylindre intérieur est chauffé et la température du cylindre extérieur est contrôlée par un échangeur. Zougari et al. imposent une température aux cylindres intérieur et extérieur égale à celle du brut. Ils font tourner le cylindre intérieur à une vitesse Ω . Ensuite ils créent un gradient de température en diminuant la température du cylindre extérieur en dessous de Θ_{cc} .

Ainsi les conditions pour qu'un dépôt de paraffine apparaisse sont réunies. Cet appareil garde les mêmes avantages que ceux cités pour l'appareil "coldfinger" à savoir la facilité relative de l'observation du dépôt formé et le faible volume de brut nécessaire pour l'essai. Contrairement au "coldfinger" l'écoulement et la thermique dans une géométrie de couette cylindrique ont fait l'objet de plusieurs études et sont donc connus.

Parmi les trois types d'installations recensées, il paraît clair que la géométrie C.C présente un certain nombre d'avantages. Toutefois il nous semble important de prendre quelques précautions. En particulier, il est connu que ce type de géométrie, au delà d'un nombre de Reynolds critique (de l'ordre de 150), engendre des instabilités sous forme de rouleaux tridimensionnels (instabilités dites de Couette Taylor) qui vont venir modifier le cisaillement et la contrainte de cisaillement au niveau du dépôt. C'est la raison pour laquelle nous avons engagé une étude préliminaire du dispositif avant sa réalisation afin d'éviter l'apparition de ces rouleaux.

VI.1 Étude préliminaire: Instabilités de "Taylor Couette":

L'écoulement dans un "Couette cylindrique" peut engendrer des instabilités hydrodynamiques. Lorsque le cylindre intérieur tourne à une faible vitesse angulaire, l'écoulement de base est stationnaire, axisymétrique et invariant par translation verticale. Au delà d'une valeur seuil, on observe que cet écoulement de base devient instable (Cf. Fig-VI-4 à gauche), et il apparaît un motif de rouleaux toriques contrarotatifs qui s'étendent tout autour du cylindre; l'écoulement reste toujours axisymétrique et stationnaire, mais cette fois la symétrie de translation verticale disparaît. En augmentant encore la vitesse angulaire, cet écoulement structuré peut devenir à son tour instable, et transiter vers la turbulence (Cf. Fig-VI-4 à droite).

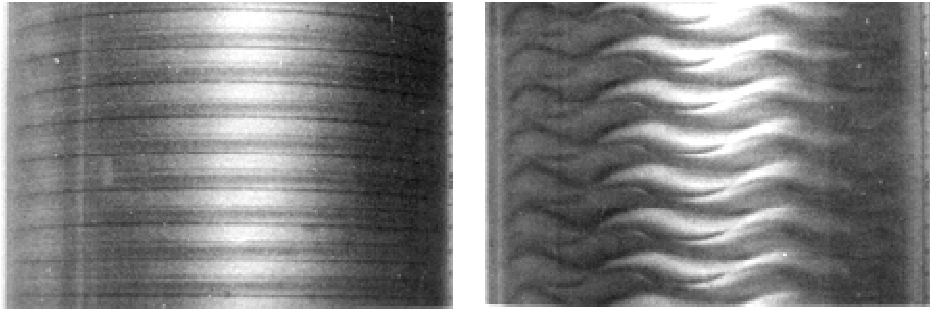


Fig- VI-4: visualisations des instabilités successives de l'écoulement entre cylindres coaxiaux. A gauche : instabilité primaire en " rouleaux ". A droite : rouleaux sinusoïdaux. Photos : Burkhalter et Koschmieder.

Il s'agit d'une instabilité centrifuge. Dans ce type d'écoulement, la trajectoire d'une particule fluide résulte d'un équilibre entre la force centrifuge et le gradient de pression centripète qui sont égaux et opposés à tout instant. En provoquant un déplacement infinitésimal d'une particule fluide, on déséquilibre la force centrifuge.

Considérons une particule initialement placée en r . L'équilibre de la force centrifuge avec le gradient de pression radial s'écrit:

$$\left. \frac{\partial P}{\partial r} \right|_r = \rho \frac{v(r)^2}{r} \quad (\text{VI.1})$$

Où P , v et r sont respectivement la pression, la vitesse orthoradiale et le rayon.

Déplaçons à présent cette particule à la position $r + dr$. Elle acquiert donc une nouvelle vitesse $\tilde{v}(r + dr)$. La conservation du moment cinétique nous permet d'écrire la relation suivante:

$$(r + dr)\tilde{v}(r + dr) = rv(r) \quad (\text{VI.2})$$

Une particule fluide placée en $r + dr$ est soumise à un gradient de pression égal à:

$$\left. \frac{\partial P}{\partial r} \right|_{r+dr} = \rho \frac{v(r + dr)^2}{(r + dr)} \quad (\text{VI.3})$$

La relation ci dessous estime la force de rappel en $r + dr$ pour que la particule fluide retourne à sa position initiale:

$$\delta F = \left. \frac{\partial P}{\partial r} \right|_{r+dr} - \rho \frac{\tilde{v}(r + dr)^2}{r + dr} \quad (\text{VI.4})$$

En combinant les relations (VI.2)-(VI.4) on obtient:

$$\delta F = \rho \left[\frac{v(r+dr)^2}{(r+dr)} - \frac{v(r)^2 r^2}{(r+dr)^3} \right] = \rho \frac{1}{(r+dr)^3} \left[(v(r+dr)(r+dr))^2 - (v(r)r)^2 \right] \quad (\text{VI.5})$$

Finalement cette force de rappel peut s'écrire comme suit:

$$\delta F = \rho \frac{1}{r^3} \frac{d}{dr} \left[(v(r)r)^2 \right] = 2\rho \frac{v(r)}{r^2} \frac{d}{dr} [v(r)r] \quad (\text{VI.6})$$

Examinons les deux situations possibles:

La force de rappel est positive i.e. le gradient de pression radial aura tendance à ramener la particule fluide à sa position initiale. L'écoulement est stable.

La force de rappel est négative i.e. le gradient de pression radial n'est pas suffisant pour compenser la force centrifuge. Dans ce cas la particule continue sa trajectoire et l'écoulement devient instable.

Dans le cas de l'écoulement d'un fluide Newtonien dans une géométrie Couette cylindrique, on connaît exactement la solution analytique de la vitesse qui s'écrit:

$$v(r) = \frac{\Omega_e b^2 (r^2 - a^2) + \Omega_i a^2 (b^2 - r^2)}{r(b^2 - a^2)} \quad (\text{VI.7})$$

Ω_e, Ω_i, a et b sont respectivement la vitesse angulaire du cylindre extérieur, la vitesse angulaire du cylindre intérieur, le rayon du cylindre intérieur et le rayon du cylindre extérieur.

La condition de stabilité implique que la variation du moment cinétique doit être positive:

$$\frac{d}{dr} [v(r)r] > 0 \quad (\text{VI.8})$$

D'où la condition de Rayleigh pour que l'écoulement soit stable :

$$\Omega_e b^2 > \Omega_i a^2 \quad (\text{VI.9})$$

Si le cylindre extérieur est immobile et le cylindre intérieur tourne à la vitesse Ω_i , l'écoulement sera à tout instant instable. Cependant, la force des frottements visqueux à généralement tendance à stabiliser l'écoulement. En écrivant le nombre de Reynolds associé à la rotation du cylindre intérieur, nous pouvons comparer les forces visqueuses aux forces inertielles:

$$R_e = \frac{\rho \Omega_i a (b-a)}{\mu} \quad (\text{VI.10})$$

Pour des faibles valeurs du nombre de Reynolds, les forces visqueuses stabilisent l'écoulement. Mais au delà d'une valeur critique de ce nombre, l'écoulement est instable. En revanche d'après le critère de Rayleigh (VI.9), si le cylindre extérieur tourne à la vitesse Ω_e et que le cylindre intérieur est fixe alors l'écoulement sera inconditionnellement stable. La figure Fig-VI-5 tiré de "Physical Fluid Dynamics, D.J. Tritton" montre les régimes d'écoulement observés dans un montage de couette cylindrique en fonction des nombres de Reynolds lorsque les deux cylindres tournent. Ce graphe confirme que, lorsque le cylindre intérieur est fixe, l'écoulement observé dans l'entrefer est un écoulement de couette quelque soit le nombre de Reynolds lié à la rotation du cylindre extérieur.

Pour la conception du dispositif expérimental qui nous permettra de recréer les dépôts de paraffine, nous choisissons que le cylindre intérieur soit fixe et le cylindre extérieur soit tournant.

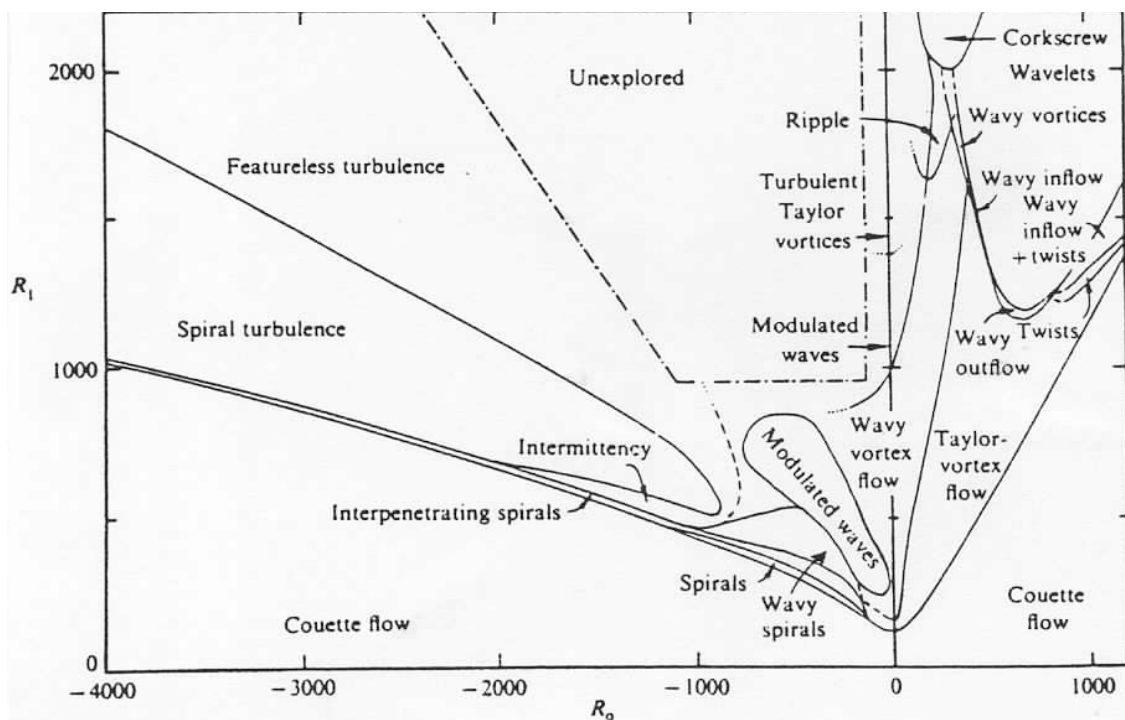


Fig- VI-5: Diagramme des états observés dans un montage de couette cylindrique en co et en contra rotation. R_o et R_i sont respectivement les nombres de Reynolds liés à la rotation du cylindre extérieur et du cylindre intérieur.

VI.2 Description du dispositif expérimental

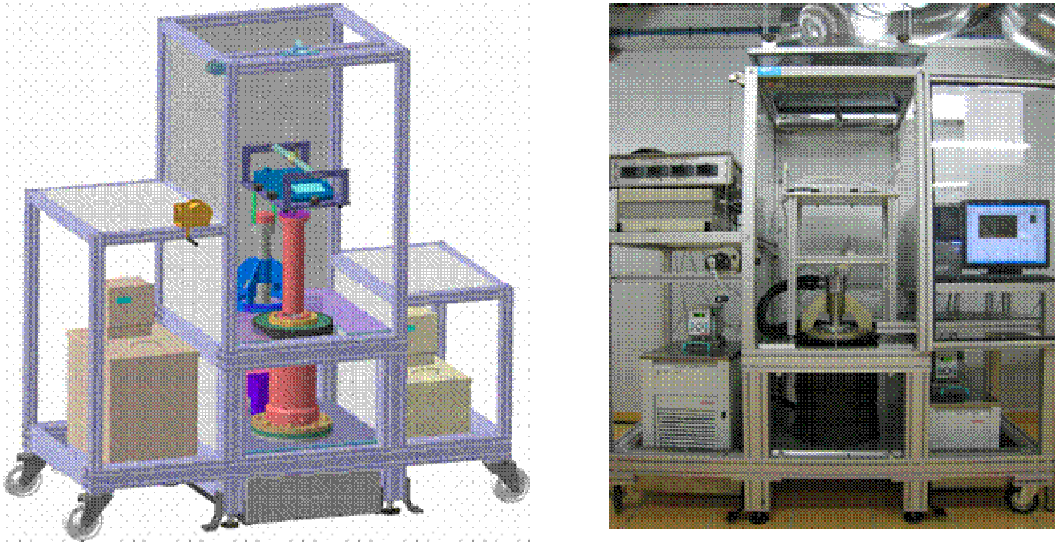


Fig- VI-6:Vue globale du dispositif expérimental.

Cet appareil est inspiré de l'article écrit par Zougari et al.2006. Il est constitué de deux cylindres coaxiaux mais contrairement à l'équipement conçu par Zougari et al.2006 où c'est le cylindre intérieur qui tourne, nous avons fait le choix de faire tourner le cylindre extérieur afin d'éviter les instabilités de Taylor Couette évoquées précédemment. La figure VI-6 donne une vue globale de l'installation.

Sur la figure VI-7 sont présentées schématiquement les principales composantes de l'installation:

La cellule de dépôt est la partie encadrée par un trait pointillé sur le schéma de la figure VI-7. C'est l'élément principal de l'installation puisque c'est dans cette cellule que va se former le dépôt de paraffine. On en trouve un schéma plus détaillé à la figure VI-8. Elle est constituée d'un cylindre tournant (le cylindre extérieur) qui sert à mettre en rotation le brut, d'une chemise cylindrique solidaire du cylindre tournant sur laquelle va se former le dépôt et d'un cylindre creux fixe (le cylindre intérieur). La chemise sur laquelle va se former le dépôt est conçue pour se "désolidariser" facilement du cylindre tournant afin d'avoir un accès "aisé" au dépôt. La hauteur de la chemise est de 300 mm pour un diamètre intérieur du cylindre

extérieur de 60 mm. Le diamètre extérieur du cylindre intérieur fixe est de 50 mm conduisant à un entrefer de 5 mm.

Le moteur et le système d'entraînement du cylindre permettent de faire tourner le cylindre extérieur. Il possède un variateur de vitesse dont la valeur peut être ajustée entre 0 et 3000tr/min. Le cylindre extérieur est entraîné par le moteur via un système de courroie crantée et poulie. Des diamètres différents de poulie permettent de faire des rapports de réduction différents pour ajuster la vitesse de rotation (pour l'instant, les rapports de réduction disponibles sont: $\frac{1}{2}$ et $\frac{1}{4}$ selon cylindre/moteur).

Les groupes thermiques sont au nombre de deux. Ils permettent de réguler les températures des parois des cylindres intérieur et extérieur et ainsi engendrer un gradient de température dans le fluide " process". Les températures mises en jeu sont comprises entre -20 et 200°C. Le bain N°1 (chaud - froid) régule la température de -20 °C à 200 °C sur le cylindre extérieur .

Le bain N°2 (chaud) régule la température de 20 °C à 200 °C sur le cylindre intérieur . Nous avons testé la vitesse de refroidissement du bain N°1. Le bain N°2 étant à l'arrêt, on impose une consigne de 0 °C au bain N°1(au départ, on est à la température ambiante de la pièce soit environ 23° C) et on voit en combien de temps on passe de la température ambiante à 0 °C: cela prend un peu moins de deux heures.

Nous avons testé la vitesse de chauffe du bain N°2. Pour passer de la température ambiante à la température de 80 °C, cela prend un peu plus de 20 minutes.

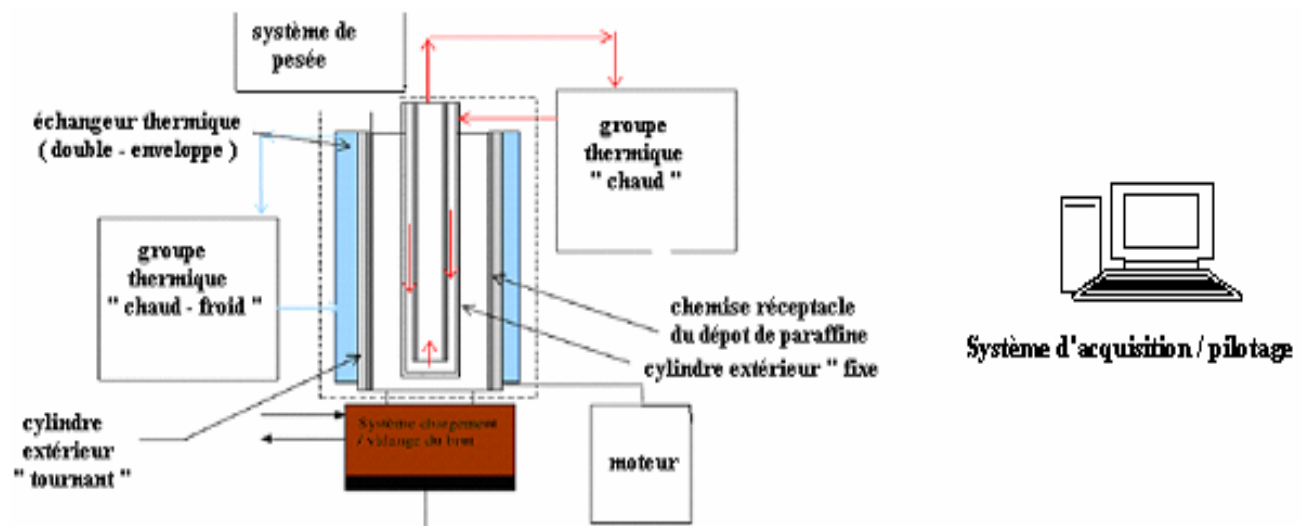


Fig- VI-7: Vue schématique des principales parties de l'unité T433.

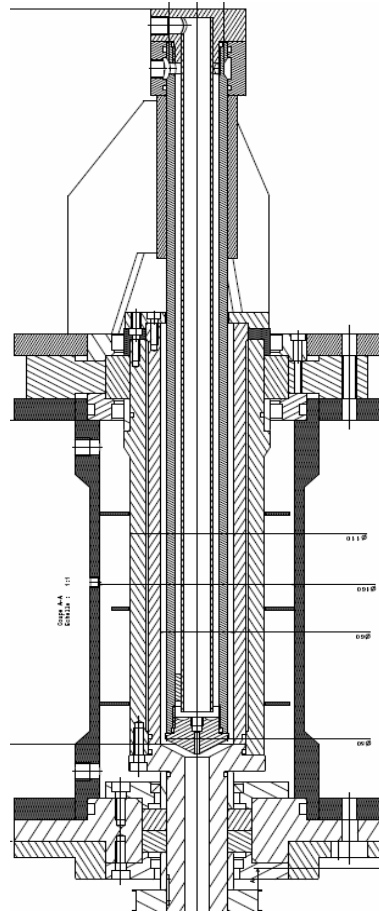


Fig- VI-8:Cellule du dépôt

Le système de pesée est composé d'une balance qui repose sur un support stable fixé sur le bâti de la cellule de dépôt, et d'un crochet. Périodiquement lors de l'essai, on arrête le moteur, on désolidarise la chemise de dépôt du cylindre extérieur et on pèse l'ensemble (chemise + dépôt). Nous avons prévu une deuxième méthode pour peser le dépôt. Elle consiste à poser la balance sur un support prévu à cet effet (support coulissant sous le système d'acquisition), démonter complètement la chemise et la poser sur la balance (voir photos sur la figure VI-9 ci-dessous). Le temps de mise en oeuvre de la première méthode est d'environ 10 minutes. Mais cette méthode est peu fiable car, compte tenu de la dimension de l'entrefer et de la précision du système de suspension, il est difficile de s'assurer que le cylindre en suspension ne touche aucun autre élément du dispositif et pendant la pesée il y a des risques de détériorer le dépôt. Le temps de mise en oeuvre de la seconde méthode est d'environ 6 minutes, cette dernière est plus sûre, précise et fiable. Pour les futurs tests nous optons pour cette solution.

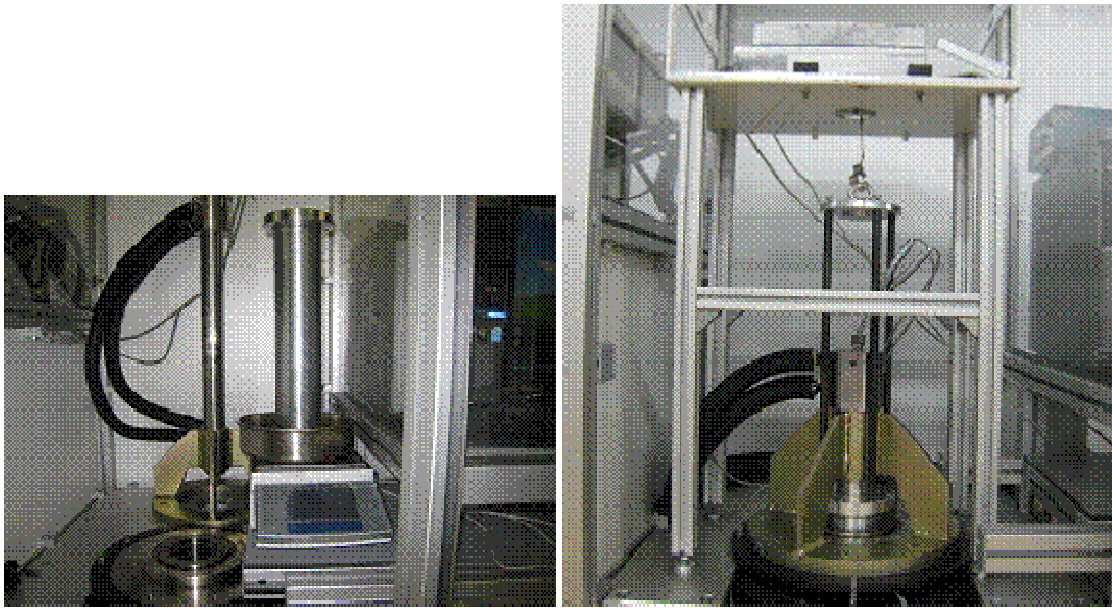


Fig- VI-9:Photos des deux systèmes de pesée

Le système de chargement et de vidange des fluides est composé d'une chambre et d'un piston situés sous la cellule de dépôt. Pour le remplissage, le piston est en position basse, on remplit la chambre avec la quantité de brut voulue puis on remonte le piston en position haute. Pour la vidange, c'est l'opération inverse qui est pratiquée. Ces opérations sont réalisées moteur à l'arrêt car le système est solidaire de la rotation. Ce système de piston a été mis en place afin de faire descendre par gravité le brut et ainsi accéder au dépôt "libre" de brut. Toute la question est de savoir si l'on ne vidange que le fluide ou également une partie du gel de consistance faible.

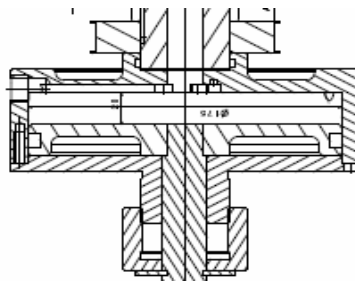


Fig- VI-10: Système de chargement /déchargement des fluides.

VI.3 Résultats

VI.3.1 Essais réalisés.

Nous utilisons toujours le brut HK comme fluide "process" pour nos essais. Ses caractéristiques physico-chimiques et rhéologiques ont été présentées dans le chapitre V.

Parmi tous les paramètres pouvant être étudiés avec l'installation (température à la paroi, gradient de température, vitesse de rotation, temps de dépôt, ...) il a été décidé dans un premier temps de se focaliser sur deux d'entre eux à savoir le temps du dépôt et le gradient de température . En effet, selon le mécanisme de diffusion moléculaire, c'est ce dernier qui est le principal moteur de création du dépôt. Deux gradients de température ont été retenus : $\Delta\Theta = 30\text{ K}$ et $\Delta\Theta = 22\text{ K}$.

Le tableau suivant regroupe l'ensemble des essais réalisés à savoir deux séries d'essais, test1 et test1bis, dans les mêmes conditions opératoires mais avec un prélèvement des échantillons en haut et au fond du fût de stockage et une série d'essai, test-2, avec un prélèvement au fond du fût de stockage mais avec un gradient thermique plus faible. La vitesse de rotation du cylindre extérieur pour tous ces essais est de 50 tr/min.

On peut remarquer que, pour chacun des deux gradients, plusieurs durées de déposition ont été effectuées afin de pouvoir tracer l'évolution temporelle de la construction du dépôt de paraffine. Afin de limiter les erreurs dues à la procédure d'observation et de pesée du dépôt, le brut a été renouvelé à chaque essai. Le test-1-bis a été effectué afin de reproduire le test-1.

Test-1: Formation de dépôt avec $\Delta\Theta = 30$ K, prélèvement haut de fût de stockage				
Action	Noms des fichiers	Température de consigne		Commentaires
		cylindre extérieur	cylindre intérieur	
Chargement de 355 cm ³ de brut.	Test1-1h	273 K	303 K	Au bout de 1h :Pesée +Photo+Raclage+Nettoyage
Remise en place chemise. Attente 0.5h avant renouvellement brut 355 cm ³	Test1-2h	273 K	303 K	Au bout de 2h :Pesée +Photo+Raclage+Nettoyage
Idem.	Test1-3h	273 K	303 K	Idem
Idem.	Test1-4h	273 K	303 K	Idem
Idem.	Test1-6h	273 K	303 K	Idem
Idem	Test1-15h	273 K	303 K	Idem
Idem	Test1-16h	273 K	303 K	Idem
Idem.	Test1-96h	273 K	303 K	Idem
Test-1-bis: Formation de dépôt avec $\Delta\Theta = 30$ K, prélèvement fond de fût de stockage				
Chargement de 355 cm ³ de brut.	Test1bis-0.25h	273 K	303 K	Au bout de 15 min :Pesée +Raclage+Nettoyage
Remise en place chemise. Attente 0.5h avant renouvellement brut 355 cm ³	Test1bis-0.5h	273 K	303 K	Au bout de 0.5h :Pesée +Raclage+Nettoyage
Idem.	Test1bis-1h	273 K	303 K	Idem
Idem.	Test1bis-2h	273 K	303 K	Idem
Idem.	Test1bis-3h	273 K	303 K	Idem
Idem.	Test1bis-4h	273 K	303 K	Idem
Idem	Test1bis-5h	273 K	303 K	Idem
Idem	Test1bis-9h	273 K	303 K	Idem
Idem.	Test1bis-15h	273 K	303 K	Idem
Test-2: Formation de dépôt avec $\Delta\Theta = 22$ K, prélèvement fond de fût de stockage				
Chargement de 355 cm ³ de brut.	Test2-0.25h	281 K	303 K	Au bout de 0.25h :Pesée +Photo+Raclage+Nettoyage
Remise en place chemise. Attente 0.5h avant renouvellement brut 355 cm ³	Test2-0,5h	281 K	303 K	Au bout de 0.5h :Pesée +Photo+Raclage+Nettoyage
Idem.	Test2-1h	281 K	303 K	Idem
Idem.	Test2-2h	281 K	303 K	Idem
Idem.	Test2-2hbis	281 K	303 K	Idem
Idem.	Test2-3h	281 K	303 K	Idem
Idem.	Test2-20h	281 K	303 K	Idem
Idem.	Test2-65h	281 K	303 K	Idem Durée: 65h

Tableau VI-1: Matrice des essais.

VI.3.2 Protocole opératoire retenu pour les essais de formation des dépôts de paraffine dans la géométrie "Couette cylindrique".

Initialement, l'unité est à l'arrêt, la cellule est vide et les deux bains thermiques sont à la température ambiante. Nous commençons le test en diminuant la température du bain n°1 afin d'atteindre la température cible sur l'ensemble "cylindre extérieur+chemise". Une fois cette température atteinte, nous fixons la température du bain n°2 afin d'atteindre la température cible sur le cylindre intérieur. Ensuite, nous laissons suffisamment de temps afin que les températures des parois intérieure et extérieure s'établissent. Afin de vérifier l'homogénéité thermique sur la hauteur de la cellule, nous mesurons la température à la paroi interne de la chemise, à l'aide d'un thermocouple, à trois endroits différents à savoir en bas, au milieu et en haut de la chemise. Ensuite nous montons la canne intérieure (cylindre intérieur) à l'aide du treuil prévu à cet effet et nous mettons également le piston en position " basse" puis nous remplissons la cavité d'un volume de 355 cm^3 de brut HK à l'aide d'un entonnoir, pour éviter l'écoulement du brut le long des parois pendant le remplissage. Pour finir, nous descendons la canne intérieure puis nous remontons totalement le piston. Le temps nécessaire pour remonter totalement le piston est de l'ordre de deux minutes. Le début de l'essai est pris dès que le moteur commence à tourner à la vitesse angulaire de $2 \times \Omega_e$. Il est à noter que pour un volume de 355 cm^3 , le fluide occupe une hauteur de 30 cm dans l'entrefer.

Nous nous intéressons à l'évolution de la quantité de dépôt de paraffine formée au cours du temps. Pour cela nous effectuons plusieurs essais avec une pesée à différents instants. Nous avons opté pour la démarche suivante:

Une fois formé au bout d'un temps t_1 , le dépôt est pesé puis récupéré pour d'éventuelles analyses. La récupération du dépôt et la mise en place de la chemise pour l'essai suivant se fait comme suit:

- On arrête le moteur et on vidange le brut de la cellule à l'aide du système prévu à cet effet.
- On remonte la canne intérieure et on désolidarise la chemise du cylindre extérieur.
- L'ensemble "chemise + dépôt" (la chemise est tarée préalablement) est pesé.

- Le dépôt est photographié.
- À l'aide d'un racleur, le dépôt est récupéré.
- La chemise est nettoyée à l'aide d'un chiffon imbibé d'heptane.
- La chemise est remise en place dans la cellule. On laisse la température de la paroi interne de la chemise s'établir durant une demi heure.
- La température de la paroi de la chemise est mesurée à trois endroits différents.

Après ces étapes, la cellule est prête pour effectuer l'essai à l'instant t_2 . Pour ce faire, nous reproduisons le protocole opératoire décrit précédemment à l'exception près que les bains thermiques sont déjà réglés. Il est à noter que, pour chaque test, nous renouvelons le brut d'essai.

Par ailleurs, pour certains essais nous avons prélevé des dépôts de paraffine à plusieurs instants pour caractériser leurs comportements.

VI.3.3 Résultats et discussions

VI.3.3.1 Températures à la paroi interne de la chemise.

Les températures de la chemise de déposition à trois endroits différents à savoir en bas, au milieu et en haut ont été mesurées à l'aide d'un thermocouple. Ces valeurs sont récapitulées dans le tableau VI-2. La température sur la paroi du cylindre intérieur est égale à 303 K.

On note que la température à la paroi interne de la chemise n'est pas uniforme axialement à savoir la paroi de la chemise est plus froide en bas qu'en haut. Cela est dû au fait que le fluide caloporteur subit un réchauffement entre son entrée (en bas) et sa sortie (en haut) et par conséquent il refroidit plus en bas qu'en haut. Les écarts de température sont de l'ordre de 2 K.

On note également un écart sensible entre la température imposée au bain thermostatée (273 K) et la température de la paroi interne de la chemise du cylindre extérieur. Cela peut s'expliquer par le fait que le liquide de refroidissement (glycol) subit une perte calorifique qui est liée sans doute à l'épaisseur du cylindre. Pour les tests à $\Delta\Theta = 30K$ et $\Delta\Theta = 22K$ les gradients de température réels sont respectivement $\Delta\Theta = 24K$ et $\Delta\Theta = 18K$.

Test-1: Formation de dépôt avec $\Delta\Theta = 30\text{ K}$						
Noms des fichiers	Température de consigne		Température mesurée			
	cylindre extérieur	cylindre intérieur	bas de la chemise	milieu de la chemise	haut de la chemise	moyenne
Test1-1h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1-2h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1-3h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1-3hbis	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1-4h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1-6h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1-15h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1-16h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1-64h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test-1-bis : Formation de dépôt avec $\Delta\Theta = 30\text{ K}$						
Test1bis-0.25h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1bis-0.5h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1bis-1h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1bis-2h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1bis-3h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1bis-4h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1bis-5h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1bis-9h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test1bis-15h	273K	303K	278K	279K	280K	279K
Test-2: Formation de dépôt avec $\Delta\Theta = 22\text{ K}$						
Test2-0.25h	281K	303K	283.9K	285.4K	285.9K	285.4K
Test2-0,5h	281K	303K	283.2K	283.7K	284.4K	283.7K
Test2-1h	281K	303K	283.9K	284.4K	285K	284.43K
Test2-2h	281K	303K	283.7K	284K	285K	284.23K
Test2-2hbis	281K	303K	283.7K	283.7K	285K	284.23K
Test2-3h	281K	303K	283.6K	284.7K	285K	284.43K
Test2-20h	281K	303K	283.2K	284.9K	285.7K	284.6K
Test2-65h	281K	303K	283.1K	285K	286K	284.1K

Tableau VI-2: Température à la paroi interne de la chemise

VI.3.3.2 Comparaison des "test-1" et "test-1-bis".

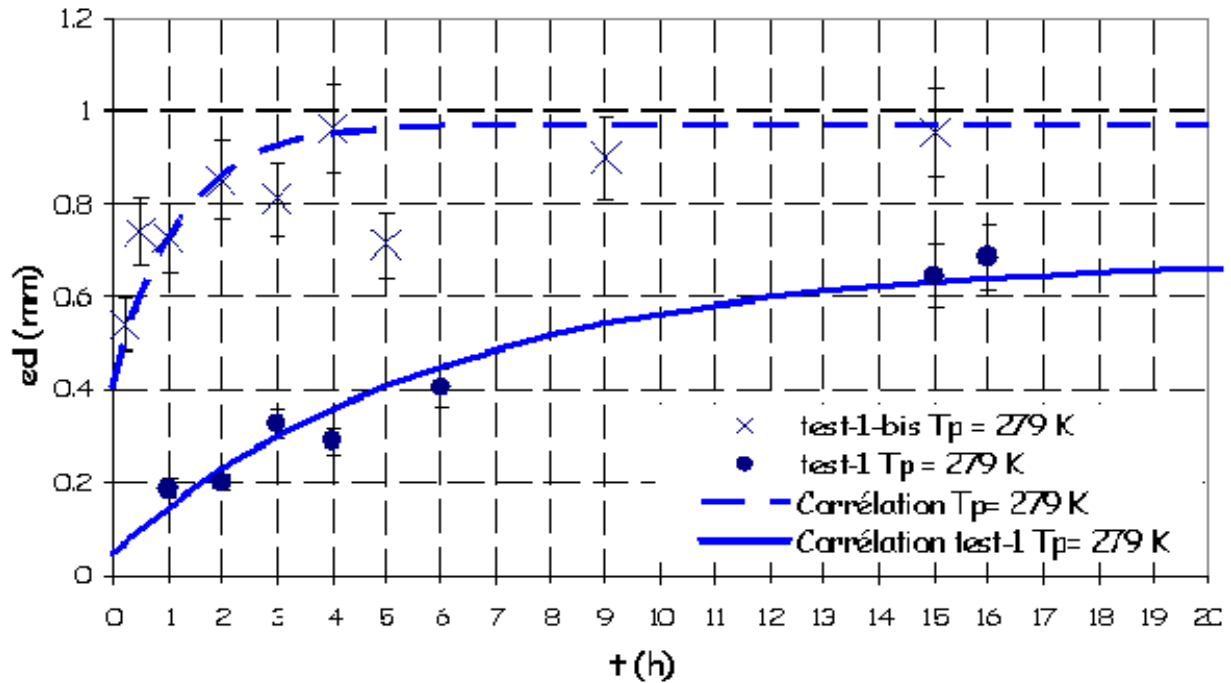


Fig- VI-11: Comparaison de l'évolution de l'épaisseur du dépôt pour les tests "Test-1" et "Test-1-bis".

Les courbes de la figure VI-11 représentent l'évolution de l'épaisseur du dépôt dans l'entrefer pour les "test-1" et "test-1-bis" obtenue via l'équation:

$$m_d = \rho_d \cdot 2\pi \cdot b \cdot e_d \cdot h \Rightarrow e_d = \frac{m_d}{2\pi \cdot b \cdot \rho_d \cdot h} \quad (\text{VI.11})$$

ou m_d , ρ_d , h et b sont respectivement la masse du dépôt récolté, la masse volumique du dépôt, la hauteur de la section de déposition et le rayon intérieur de la chemise de déposition. Cette formule est établie avec les hypothèses suivantes:

- la masse volumique des paraffines est la même que celle du brut
- le dépôt est uniforme sur la hauteur et la périphérie de la section de déposition.

De toute évidence, la reproductibilité des mesures pour ces tests n'est pas assurée puisque nous constatons que l'évolution de l'épaisseur du dépôt est complètement différente d'un cas de figure à l'autre alors que les conditions opératoires restent les mêmes dans les deux tests.

Nous constatons, en particulier, que l'épaisseur de dépôt finale du "test-1" est plus petite que celle du test "test-1-bis". Nous pouvons expliquer cette différence par le fait qu'il y a sans doute une stratification des paraffines dû à la gravité dans le fût de vingt litres d'où les échantillons utilisés pour les essais ont été extraits. En effet, les échantillons utilisés pour le test "test-1" ont été prélevés en haut du fût alors que ceux du test "test-1-bis" ont été prélevés au fond du fût. Il est donc possible que le brut au fond du fût soit plus paraffinique que celui en haut du fût dû à une homogénéisation insuffisante. En d'autre terme, cela revient à dire que ces deux courbes représentent l'évolution de l'épaisseur du dépôt pour deux bruts "différents" avec des teneurs en normales paraffines différentes.

Dans la réalité de l'écoulement en conduite, le brut aura une composition intermédiaire entre ces deux cas puisque le phénomène de stratification dû à la gravité est négligeable. En effet, on peut considérer que le pétrole brut est constamment agité et homogénéisé et les paraffines n'ont donc pas le temps de sédimenter.

Dans la suite de ce chapitre nous allons utiliser les données obtenues lors des "test-1-bis" que l'on comparera aux données obtenues lors du "test-2" car les échantillons du test-2 ont été prélevés au fond du fût au même endroit que ceux du test "test-1-bis".

VI.3.3.3 Observations visuelles des dépôts

Les photos présentées sur la figure VI-12 représentent des exemples de dépôts obtenus lors des tests "test-1-bis" dans les premières heures (à gauche) et au bout de quelques heures (à droite). Nous rappelons que le gradient réel dans l'entrefer pour ces tests est égal à 24 K. Visuellement, les dépôts obtenus lors des premières heures semblent plus "mouillés" et plus lisses que ceux obtenus au bout d'une dizaine d'heures. Cela peut s'expliquer par le fait que le dépôt vieillit au cours du temps, i.e. lors des premières heures le dépôt est essentiellement composé de brut et d'une petite quantité de cristaux de paraffine. Plus le temps avance et plus le dépôt s'enrichit en cristaux de paraffine. Cette explication est renforcée par le fait que, lorsqu'on a raclé et récupéré les dépôts dans des flacons, nous avons noté que les dépôts récoltés lors des premières heures se comportent comme des fluides à température ambiante alors que le dépôt récolté au bout de quinze heures se trouve à l'état de gel à température ambiante. Les mêmes remarques sont faites sur les dépôts obtenus avec un gradient réel dans l'entrefer égal à 18 K à l'exception près que le dépôt récolté au bout de soixante quatre heures

ne reste pas à l'état de gel à température ambiante. Cela signifie que la quantité finale de cristaux de paraffine présente dans le dépôt au bout de soixante quatre heures avec un gradient de température de 18 K est moins importante que celle présente dans le dépôt obtenu avec un gradient de température de 24 K.

Ces constations vont dans le même sens que celles faites lors des essais sur la boucle Lyre exposés dans le chapitre III.

VI.3.3.4 Étude de l'influence du gradient de température.

Test-1-bis: Formation de dépôt avec $\Delta\Theta = 30\text{ K}$			
nom fichier	t (h)	m_d (g)	e_d (mm)
Test-1bis-0.25h	0.25	26.7	0.54
Test-1bis-0.5h	0.5	36.6	0.74
Test-1bis-1h	1	36	0.73
Test-1bis-2h	2	42.1	0.85
Test-1bis-3h	3	40.1	0.81
Test-1bis-4h	4	47.6	0.96
Test-1bis-5h	5	35.2	0.71
Test-1bis-9h	9	44.5	0.90
Test-1bis-15h	15	47.2	0.96
Test-2: Formation de dépôt avec $\Delta\Theta = 22\text{ K}$			
Test-2-0.25h	0.25	16.4	0.32
Test-2-0.5h	0.5	21	0.42
Test-2-1h	1	24.5	0.49
Test-2-2h	2	24.5	0.49
Test-2-3h	3	22.5	0.45
Test-2-20h	20	26.8	0.54
Test-2-65.5h	65.5	25.8	0.53

Tableau VI-3: Masses et épaisseurs des dépôts obtenus lors des essais.

Les masses des dépôts pesés lors des essais des "Test-1bis" et "Test-2" sont présentées dans le tableau VI-3. Dans ce tableau on trouve également les épaisseurs des dépôts estimées via l'équation VI.11. Nous constatons, en règle générale, que la masse du dépôt et donc l'épaisseur du dépôt augmente avec le temps sauf pour les tests surlignés en jaune.

L'erreur commise sur les valeurs de l'épaisseur à partir de l'équation (VI-11) est :

$$\frac{\Delta e_d}{e_d} = \frac{\Delta m_d}{m_d} + \frac{\Delta h}{h} + \frac{\Delta \rho_d}{\rho_d} \quad (\text{VI.12})$$

Les incertitudes liées à la masse du dépôt sont multiples. Tout d'abord on a une incertitude liée à la balance qui reste néanmoins faible (10 mg). Il y a également des incertitudes liées à l'égouttage lors de la pesée. Elles sont difficiles à estimer. Celles ci peuvent être importantes dans les essais à courte durée et plus faibles pour des essais à longue durée car conformément aux observations visuelles les dépôts obtenus dans les première heures contiennent plus de fluide que de cristaux de paraffine. Pour influencer le moins possible la pesée, on effectue cette opération de manière rapide et de la même manière pour tous les essais.

Il y a également une erreur qui peut provenir de la hauteur. En effet, il n'est pas sûr que le volume mis dans l'entrefer est le même pour tout les essais. Cependant, nous avons mesuré la hauteur de déposition pour quelques essais, l'erreur notée est approximativement de 1%.

Une incertitude liée à la masse volumique peut apparaître également. En effet, pour estimer l'épaisseur du dépôt via l'équation (VI.11), on a considéré que la masse volumique du dépôt est la même que celle du brut or le dépôt est composé de brut et des cristaux de normales paraffines qui ont une masse volumique légèrement supérieure au brut. En conséquence, ces erreurs vont être d'autant plus grandes que les essais sont longs. En somme, nous estimons que l'erreur commise sur chaque mesure est de l'ordre de 10%.

La courbe de la figure Fig VI-13 représente l'évolution temporelle de l'épaisseur du dépôt pour le "test-1-bis" ainsi que le lissage correspondant. Nous constatons que nous avons trois phases d'évolution pour l'épaisseur du dépôt. Dans un premier temps, assez rapidement, on a un développement d'une épaisseur initiale. Cela peut s'expliquer par le fait qu'une couche de brut gélifie à cause des effets thermiques. Dans la deuxième phase et la troisième phase, l'épaisseur du dépôt croît progressivement pour atteindre une asymptote. Cette augmentation peut être causée par la diffusion moléculaire de la paraffine liquide vers la paroi. L'asymptote peut s'expliquer par le fait que la quantité de paraffine cristallisable dans le brut d'essai est "finie": au bout d'un certain temps toute la paraffine cristallisable a cristallisé. Une autre explication est que l'épaisseur du dépôt correspond à la zone où la température est inférieure à la température de cristallisation commençante.

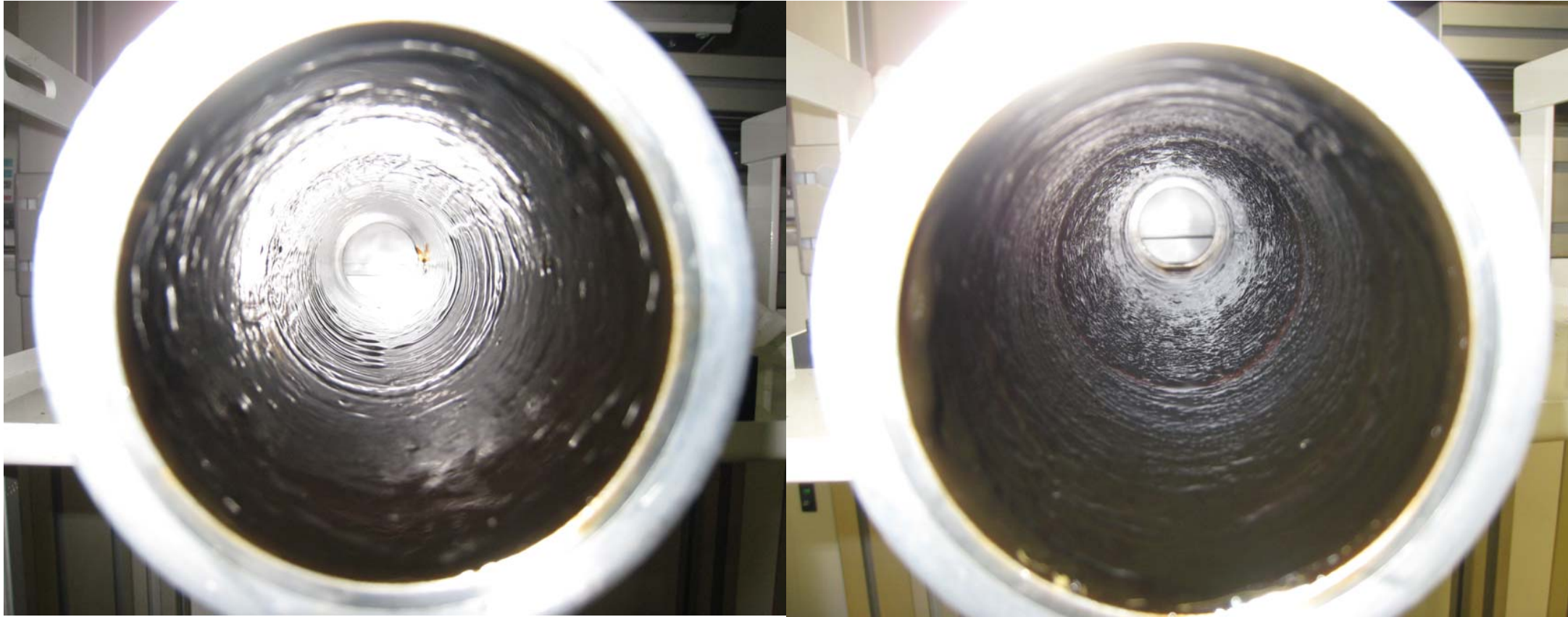


Fig- VI-12:Exemples de dépôts de paraffine. À gauche un dépôt obtenu à la première heure et, à droite, obtenu après une dizaines d'heures.

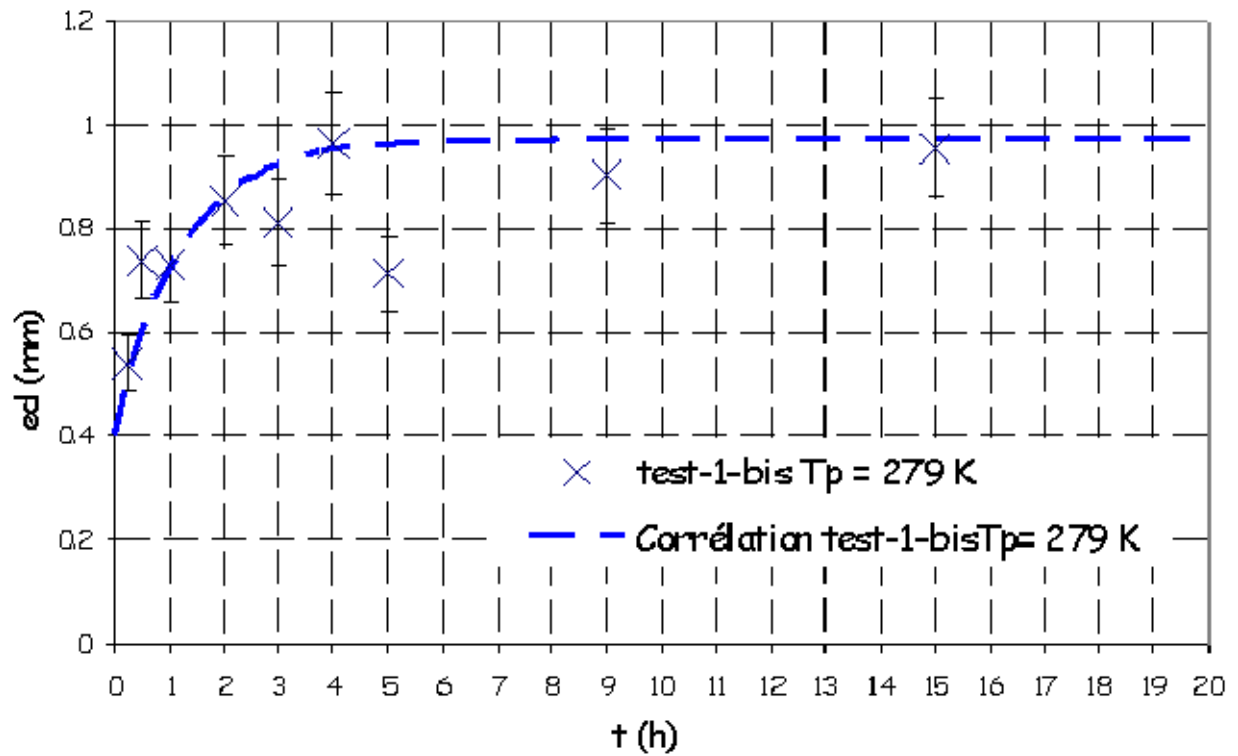


Fig- VI-13: Évolution temporelle de l'épaisseur du dépôt pour le test "Test-1-bis".

Nous pouvons corréler les points mesurés par l'équation suivante:

$$e_d = \left(e_{\max} - (e_{\max} - e_i) \times \exp\left(-\frac{t}{t^*}\right) \right) \quad (\text{VI.13})$$

ou e_{\max} est l'épaisseur asymptote, t^* est un temps caractéristique résultant de l'intersection de la pente à l'origine avec l'épaisseur asymptote et e_i est l'épaisseur formée dans les premiers instants. Le temps caractéristique, l'épaisseur initiale et l'asymptote relevés pour le test "test-1-bis" sont respectivement une heure et sept minutes, 0.4 mm et 0.95 mm.

La figure VI-14 représente l'évolution temporelle de l'épaisseur du dépôt pour le "test 2". De la même manière que pour le "test 1-bis", on constate une épaisseur de dépôt qui apparaît dans les premières minutes puis nous avons une évolution quasi linéaire de cette épaisseur pour enfin atteindre une asymptote. La corrélation VI-13 est encore valable pour ce test. Le temps caractéristique, l'épaisseur initiale et l'épaisseur asymptote pour le "test 2" sont respectivement trente cinq minutes, 0.23 mm et 0.55 mm.

- D'une part, d'après ces deux tests, nous constatons que nous atteignons plus vite la valeur asymptote lorsque le gradient de température décroît. Ceci peut s'expliquer par le fait que pour abaisser le gradient de température nous avons augmenté la température à la paroi de la chemise de déposition. Ceci a eu pour effet de diminuer la viscosité du brut au voisinage de cette paroi. Si l'on se réfère à la relation $D_m = \frac{C_1}{\mu}$ introduite dans le chapitre II, cela conduit à un coefficient de diffusion plus grand et donc une "mobilité" plus forte des paraffines vers la paroi. D'ailleurs, si on utilise les valeurs de la viscosité apparente du brut HK aux températures 279 K et 284 K tirées de la courbe V-14, on trouve que le coefficient de diffusion, D_{m2} , lors du "test2" est six fois plus grand que celui du test "test1-bis", D_{m1} $\left(\frac{D_{m2}}{D_{m1}} = \frac{\mu_1}{\mu_2} \approx 6 \right)$.
- D'autre part la valeur asymptote du "test-1-bis" est plus importante que celle du "test-2", i.e. plus le gradient de température est important et plus l'épaisseur maximale est grande. Cela est cohérent puisque c'est le gradient de température qui est moteur dans l'enrichissement en paraffine et donc, plus celui ci est grand, plus la quantité de paraffine qui migre vers la paroi est grande. De plus, étant donné que les températures mises en jeu dans le "test-1-bis" sont plus faibles que celles du "test-2", la quantité de paraffine cristallisable dans le "test-1-bis" est plus importante que celle du test "test-2".

De la même manière, nous constatons que l'épaisseur initiale qui apparaît dans les premières minutes est plus élevée dans le cas du test "test-1-bis" que dans le test "test-2". Ceci est cohérent puisque la température à la paroi de la chemise de déposition pour le test "test-1-bis" est plus froide que celle du test "test-2".

Il est intéressant de constater que l'épaisseur initiale pour le test "test-1" est plus petite que celle du test "test-2" (voir figure VI-11 et VI-14). Si les échantillons du test "test-1" et du test "test-2" avaient la même teneur en paraffine, cette constatation serait contradictoire.

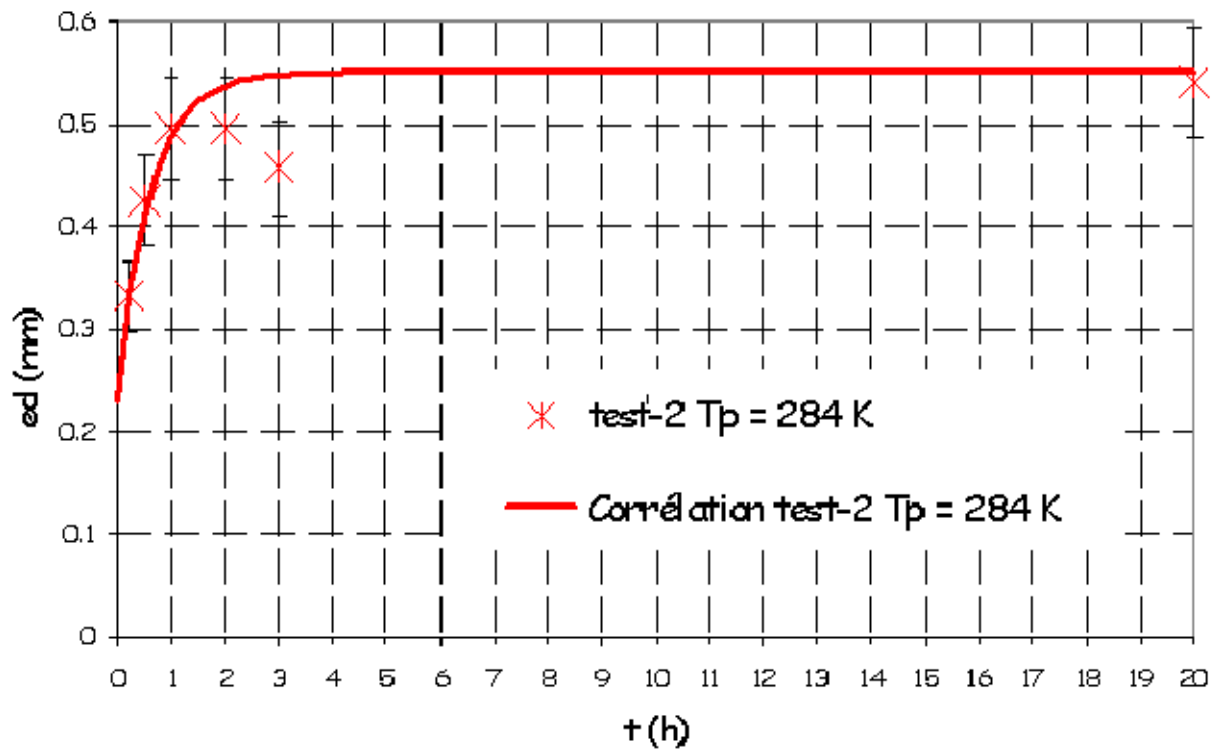


Fig- VI-14: Évolution temporelle de l'épaisseur du dépôt pour le test "Test-2".

La figure VI-15 représente l'évolution de $\frac{(e_d - e_{\max})}{(e_i - e_{\max})}$ en fonction de $\frac{t}{t^*}$ pour les deux tests.

Nous constatons que ces points peuvent être corrélés par une courbe maîtresse de la forme suivante:

$$\frac{(e_d - e_{\max})}{(e_i - e_{\max})} = \exp\left(-\frac{t}{t^*}\right) \quad (\text{VI.14})$$

Cette relation est intéressante puisque il suffit de connaître l'épaisseur maximale de dépôt que pourrait atteindre un brut donné à une température donnée, l'épaisseur du dépôt dès les premiers instants, et le temps caractéristique pour prédire l'évolution du dépôt dans une géométrie de "Couette cylindrique".

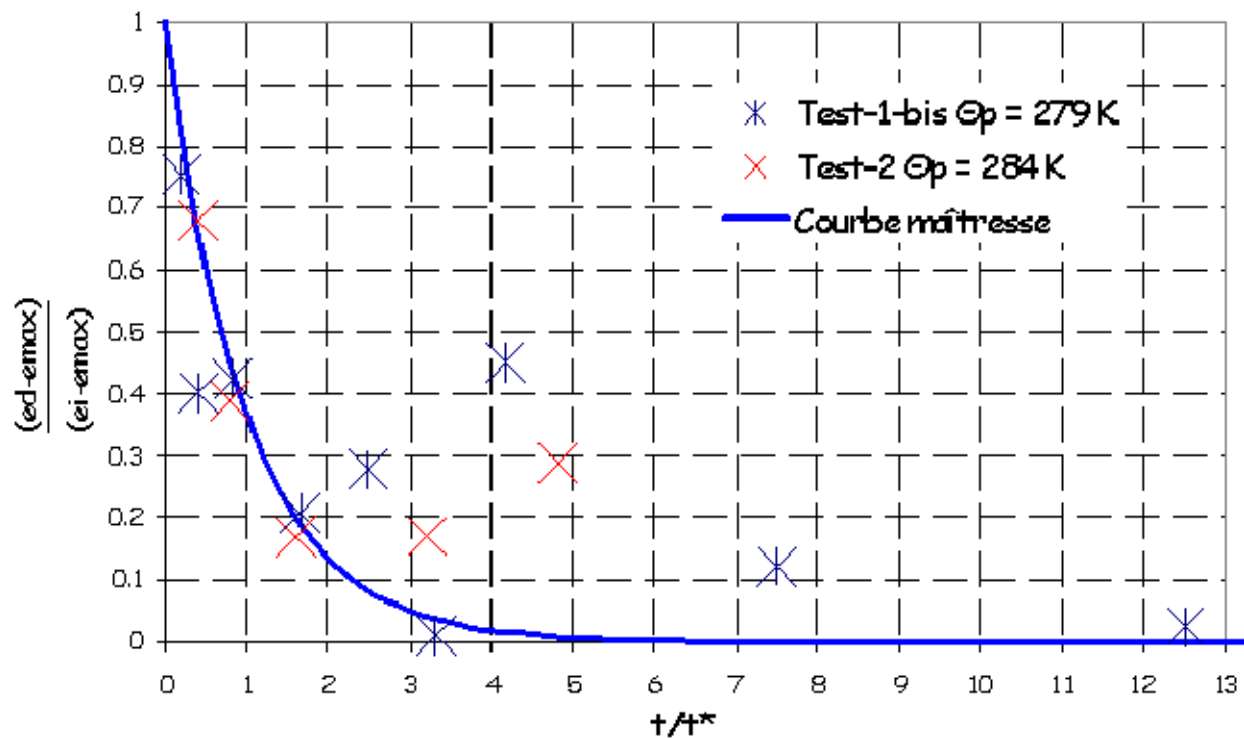


Fig- VI-15: Courbe maîtresse de l'évolution temporelle de l'épaisseur du dépôt pour les tests "Test-1-bis" et "Test-2".

VI.3.3.5 La rhéologie du dépôt de paraffine :

Nous avons prélevé les dépôts de paraffine du test-1-bis afin de caractériser leurs comportements. Le rhéomètre Anton Paar MCR 501 à contrainte imposée équipé d'un système Peltier pour le contrôle de la température a été utilisé. Une chambre de régulation de température via un système Peltier est utilisée afin de rendre la température homogène dans l'échantillon et donc d'éviter les problèmes de dépôt lors des mesures. La géométrie retenue pour ces mesures est un plan/plan avec le plan supérieur strié pour éviter les glissements, de diamètre 50mm et d'entrefer 200 μ m.

Nous pourrions imaginer mesurer directement la rhéologie sur le dépôt prélevé sur la chemise de déposition. Ceci est difficile pour plusieurs raisons:

- Les dépôts récupérés dans les premières heures de l'essai refondent à température ambiante (voir paragraphe VI.3.3.3)
- Ces dépôts ont une texture, quand il ne refondent pas, qui est impropre à une mesure rhéologique fiable.

Pour ces raisons nous avons choisi avant chaque mesure sur le rhéomètre, de porter les échantillons à haute température sur une plaque chauffante avec agitateur magnétique afin de dissoudre tout les cristaux. Pour un échantillon donné, on reproduit ce qui se passe près de la paroi interne de la chemise en chauffant pendant 10min à 303K sur le rhéomètre, puis en refroidissant sous cisaillement $\dot{\gamma}_p = \Omega_e \times \left(\frac{b^2 + a^2}{b^2 - a^2} \right) = 30s^{-1}$ avec une vitesse de refroidissement de 5°C/min jusqu'à la température de la paroi 279 K . Enfin, on fait varier le cisaillement de $30 s^{-1}$ à $0.01s^{-1}$ pour avoir la courbe d'écoulement.

Les courbes de la figure VI-16 traduisent les comportements rhéologiques des différents dépôts de paraffine récupérés au bout de 0.5h, 4h, 9h et 15h lors du "test-1-bis" et les corrélations de Bingham qui leurs sont associées. Nous constatons clairement que l'ensemble des dépôts de paraffine se comportent comme des fluides de Bingham. Il est intéressant de voir que le comportement de ces dépôts diffère de celui du brut HK alors qu'ils sont construits à partir du même brut HK. Cela traduit le fait qu'au cours du temps la nature du dépôt change. C'est probablement l'enrichissement en normales paraffines qui en est le responsable. Nous constatons également que la contrainte seuil et la viscosité plastique croissent au cours du temps. La contrainte seuil croît d'un facteur de 15 entre le dépôt récupéré au bout d'une 0.5h et celui récupéré au bout de 9h puis elle semble tendre vers une valeur asymptote (rapport de 1.3 entre 9h et 15h). De la même manière, la viscosité plastique croît rapidement durant les premières heures puis elle tend vers une valeur asymptote (0.11 Pa.s). Nous avons vu dans le paragraphe VI-3-4 qu'une quantité de paraffine finie est atteinte au cours du temps; cela peut expliquer le fait que la croissance de la contrainte seuil et de la viscosité plastique ralentit. Il y a saturation de l'enrichissement en normales paraffines.

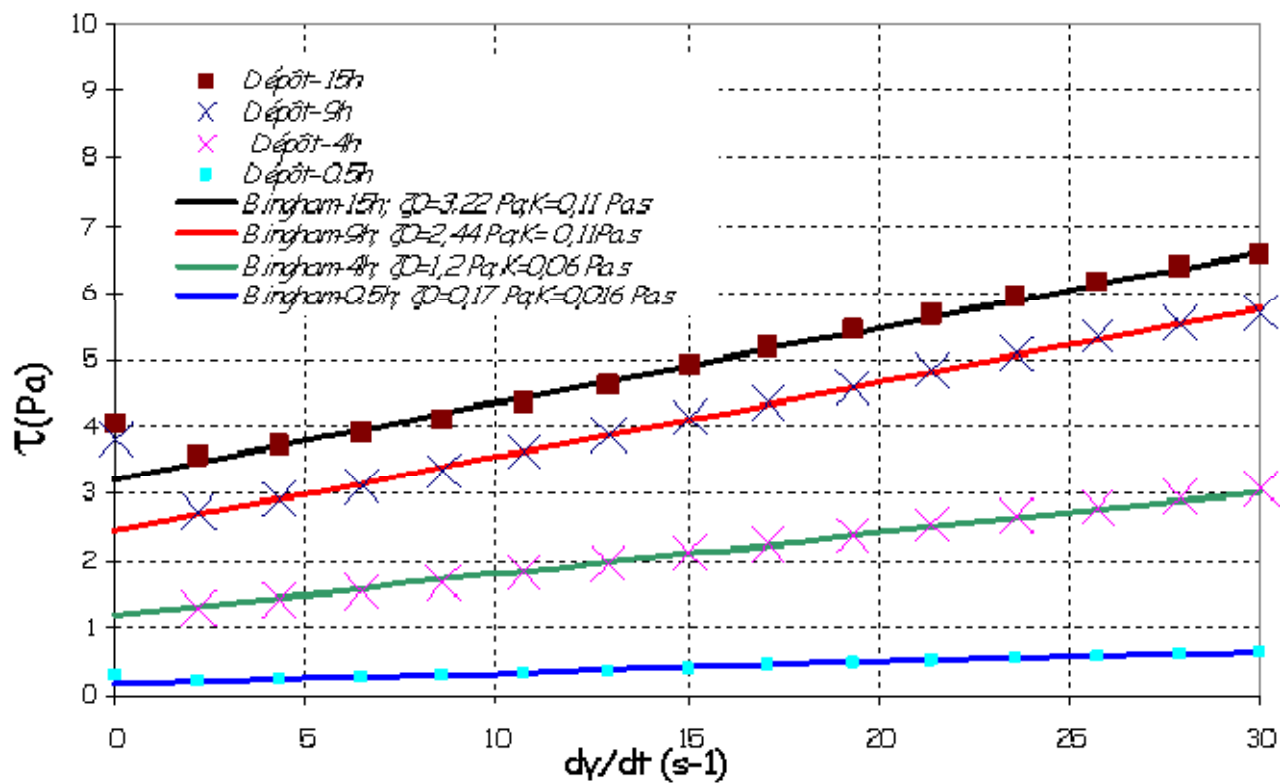


Fig- VI-16: Courbes d'écoulement des dépôts de paraffine récupérés lors du test "Test-1-bis" au bout de 0.5h, 4h, 9h et 15h à 279K.

VI.3.4 Conclusion

Le dispositif expérimental de Couette que nous avons réalisé est un outil économe et efficace pour étudier les phénomènes de dépôt en conduite. Ce dispositif doit permettre d'étudier, pour chaque brut considéré, l'incidence des paramètres du procédé: le gradient de température et le taux de cisaillement.

Les essais, préliminaires effectués, nous ont permis de dégager certaines tendances qui viennent confirmer les observations faites lors des essais réalisés dans la boucle Lyre (voir chapitre III). Notamment, on observe que l'épaisseur du dépôt atteint une asymptote. Toutefois la raison diffère probablement dans les deux situations. En effet ici, il est probable que l'on cristallise toutes les paraffines potentiellement cristallisables à la température concernée.

Ces essais ont aussi permis de mettre en évidence, dans les conditions qui ont été réalisées, la formation, dès les premiers instants, d'une couche de brut gélifiée à la paroi. Dans ce cas c'est

la thermique qui initie le phénomène. Ensuite c'est l'enrichissement en paraffine qui vient faire croître cette couche, l'analyse rhéologique des dépôts prélevés l'a bien montrée.

Dans ces essais l'augmentation du gradient thermique, par l'abaissement de la température de paroi où va se créer la dépôt, conduit à une épaisseur finale plus importante mais à un temps caractéristique d'évolution de l'épaisseur du dépôt plus faible. Ce dernier point peut s'expliquer par un ralentissement du mécanisme de diffusion moléculaire du fait de la "viscosification" locale du brut due à l'abaissement de température.

Afin de vérifier toutes ces tendances et de compléter notre analyse, nous allons par la suite confronter ces données au modèle numérique que nous avons proposé dans le chapitre IV en l'adaptant à la géométrie du nouveau montage expérimental.

VI.4 Analyse complémentaire à l'aide du Modèle numérique de "Couette cylindrique" monodimensionnel.

VI.4.1 Le modèle

Dans ce paragraphe nous allons reproduire la formation d'un dépôt de paraffine dans une géométrie Couette cylindrique avec les conditions aux limites proposées sur la figure Fig-VI-17. Pour ce faire nous avons adapté le code numérique bidimensionnel développé au chapitre IV au cas monodimensionnel rencontré dans cette expérience de Couette. Le système d'équations résolu pour ce type d'écoulement est le suivant :

Conservation de la masse et de la quantité de mouvement :

$$\begin{cases} \vec{\nabla} \cdot \vec{U} = 0 \\ \rho \frac{\partial \vec{U}}{\partial t} + \vec{\nabla} P = \vec{\nabla} \cdot \underline{\underline{\tau}} \\ + C.L \end{cases} \quad (VI.15)$$

Conservation de l'énergie :

$$\rho C_f \frac{\partial \Theta}{\partial t} = \lambda_f \nabla^2 \Theta \quad (\text{VI.16})$$

Conservation de la quantité de paraffine :

$$\frac{\partial C_l}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (D_m \vec{\nabla} C_l) - \frac{\partial C_s}{\partial t} \quad (\text{VI.17})$$

où C_l est la concentration de paraffine dissoute dans le fluide, D_m le coefficient de diffusion du fluide supposé constant, C_s la quantité de paraffine cristallisée.

La loi de comportement : la loi viscoplastique de type Bingham a été retenue pour modéliser le comportement rhéologique du brut. La consistance μ et la contrainte seuil τ_0 dépendent de la température et de la quantité de paraffine cristallisée C_s .

$$\begin{cases} \underline{\tau} = 2\mu(\Theta, C_s) \cdot \underline{D} + \frac{D}{\|D\|} \cdot \tau_0(\Theta, C_s) & si \|\tau\| > \tau_0(\Theta, C_s) \\ D = 0 & si \|\tau\| \leq \tau_0(\Theta, C_s) \\ \tau_0 = 0 & si \Theta > \Theta_{cc} \\ \tau_0 = \tau_0(\Theta, C_s) & si \Theta \leq \Theta_{cc} \end{cases} \quad (\text{VI.18})$$

avec

$$C_s = f(\Theta, C_l) \quad si \Theta \leq \Theta_{cc} \quad (\text{VI.19})$$

Conditions aux limites et Initiales :

Nous posons quelques hypothèses de calcul :

H-1 : Écoulement axisymétrique : $\frac{\partial}{\partial \theta} = 0$.

H-2 : Les cylindres sont infiniment longs $\frac{h}{b-a} \gg 1$, les effets de bord sont donc négligeables.

Nous pouvons considérer que la vitesse axiale, $w = 0$.

H-3 : L'écoulement est axialement homogène : $\frac{\partial}{\partial z} = 0$.

H-4 : $\vec{U} = (0, v(r), 0)$.

En respectant ces hypothèses, les équations de conservation pourront être résolues en monodimensionnel.

Initialement, le fluide est à la même température que la paroi du cylindre intérieur Θ_a . Cette température est supérieure à la température de cristallisation commençante, Θ_{CC} . La paroi du cylindre extérieur est à la température Θ_b inférieure à Θ_{CC} . Une vitesse de rotation Ω_e est imposée au cylindre extérieur. Le cylindre intérieur est immobile. La condition de non glissement est imposée aux parois des deux cylindres. Le fluide contient une quantité de paraffine finie, C_0 . Les parois sont imperméables d'où : $\frac{\partial C_l}{\partial r}(a,t) = \frac{\partial C_l}{\partial r}(b,t) = 0$.

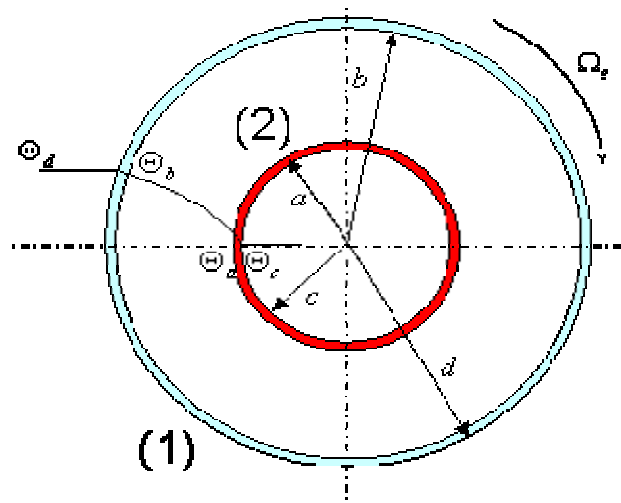


Fig- VI-17: Géométrie de CC et conditions aux limites

Les principales différences entre la résolution dans une géométrie couette cylindrique et la résolution pour un écoulement en conduite (chapitre IV) résident dans le fait que la quantité de paraffine est finie et n'évolue pas au cours du temps (en conduite du brut "frais" entre en permanence) et qu'il n'y a pas de termes convectifs

La résolution numérique du système d'équations dans la géométrie Couette est basée sur la méthode du Lagrangien augmentée expliquée dans le paragraphe IV-3-1. Le domaine de calcul est discrétisé par la méthode des volumes finis. Le problème vitesse-pression est résolu par un algorithme d'Uzawa associé à la méthode du Lagrangien augmenté. La résolution de l'équation de Fick avec un terme puit se fait par la méthode de Marshuk-Yanenko. La résolution du problème thermique, de la conservation de la paraffine C_l et du problème vitesse-pression se fait de manière découplée. Le régime stationnaire est atteint lorsque la variation des inconnues d'un pas de temps à l'autre est suffisamment petite.

Les détails de la résolution numérique ainsi que de la validation de ce code monodimensionnel sont présentés en Annexe I.

VI.4.2 Cas de base: écoulement d'un fluide de Bingham dans une géométrie "Couette cylindrique" avec un mécanisme d'enrichissement :

Nous simulons l'écoulement du brut HK respectant les conditions aux limites de la figure VI-17. La corrélation utilisée pour la contrainte seuil est celle établie dans le chapitre V-3, à savoir $\tau_0(\Theta, C_s) = 0.0013 e^{B\left(\frac{1}{\Theta} - \frac{1}{\Theta_{cc}}\right)} \times e^{D(\Theta)C_s}$. La variation de la consistance en fonction de la température et des cristaux de paraffine est égale à $K(\Theta, C_s) = A'(\Theta).e^{B'(\Theta)C_s}$. Nous utilisons la corrélation déterminée par DSC dans le chapitre V pour déterminer la quantité de paraffine cristallisée pour une température inférieure à Θ_{cc} : $C_s(\Theta, \Delta C_l) = (\beta \times \Theta + \varphi)\Delta C_l + C_{si}(\Theta)$ avec β et φ des constantes et $C_{si}(\Theta)$ la courbe déterminée par DSC pour le brut sans enrichissement. ΔC_l est l'enrichissement.

Nous imposons au cylindre extérieur une vitesse angulaire $\Omega_e = 104 \text{ rad.s}^{-1}$ et une température de $\Theta_b = 279K$ à sa paroi. La température de la paroi du cylindre intérieur est $\Theta_a = 303K$. La température de cristallisation commençante est de 293.3 K. La capacité calorifique, la masse volumique et la conductivité thermique sont respectivement égales à 2000, 872.3 kg.m^{-3} et $0.2 \text{ W m}^{-1}\text{K}^{-1}$. Nous fixons, dans un premier temps, arbitrairement le coefficient de diffusion constant $D_m \approx 10^{-9} \text{ m}^2 / \text{s}$.

La courbe sur la figure VI-18 représente l'évolution de la température dans l'entrefer. Le régime permanent est atteint au bout de cent secondes. Nous constatons que le profil en régime stationnaire est quasi linéaire. Cette approximation est usuellement utilisée dans la littérature lorsque l'entrefer est petit ce qui est le cas dans cette étude.

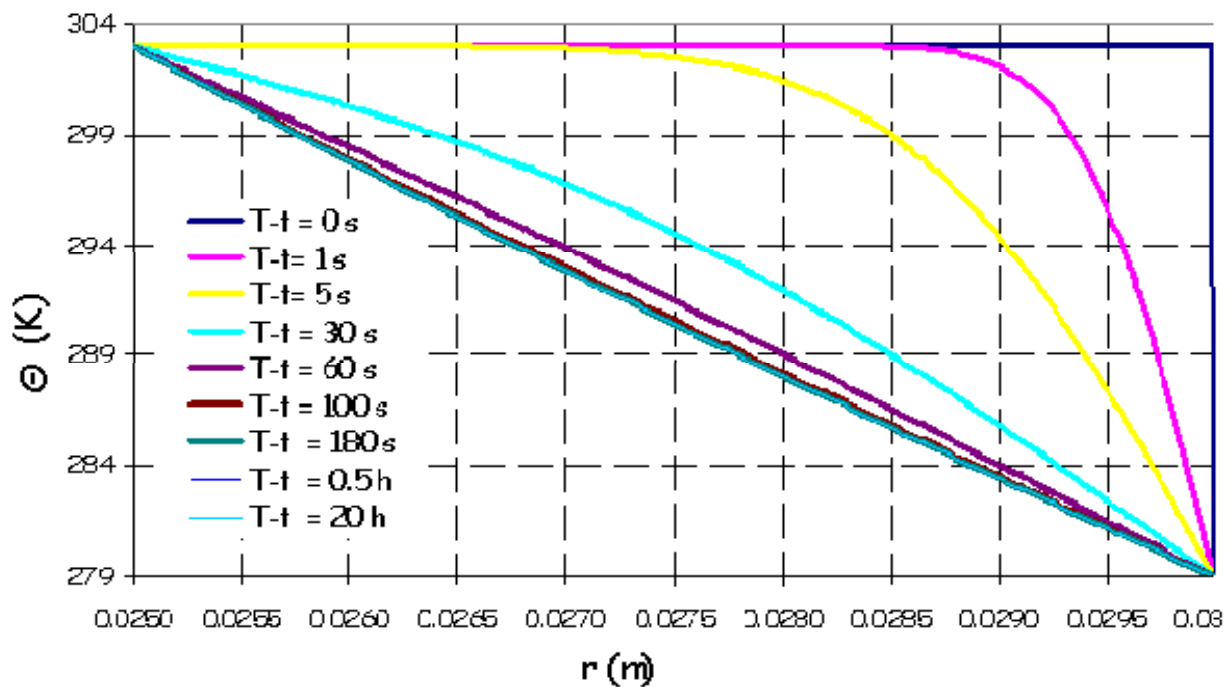


Fig- VI-18: Évolution de la température dans l'entrefer à différents instants.

L'évolution de la paraffine dissoute dans l'entrefer est présentée sur la figure VI-19. Nous constatons qu'il y a appauvrissement en paraffine dissoute entre l'instant initial et la fin de la simulation. La raison est que les normales paraffines cristallisent en dessous de la température de cristallisation commençante. L'appauvrissement s'est fait de la manière suivante: dès les premiers instants toute la paraffine cristallisable en dessus de la Θ_{cc} a cristallisé, ainsi il y a un déficit de paraffine liquide dans la zone en dessous de la température de cristallisation commençante Θ_{cc} et ceci a déclenché le mécanisme de diffusion moléculaire qui a fait migrer de la paraffine liquide du cylindre intérieur (cylindre chaud) vers le cylindre extérieur (cylindre froid) jusqu'à atteindre une concentration des normales paraffines dissoutes homogène dans tout l'écoulement. Quand cette concentration est homogène il ne peut plus y avoir de diffusion. Il a fallu approximativement 20 heures pour arriver à l'état final. Il faut noter que le temps nécessaire pour l'établissement du régime permanent pour la diffusion moléculaire est beaucoup plus élevé que celui de la température.

La quantité des cristaux de paraffine à plusieurs instants est présentée sur la figure VI-20. Une fois le régime thermique établi, les courbes peuvent être divisées en trois parties. Dans la

partie I où la température est au dessus de la température de cristallisation commençante Θ_{cc} , il y a absence de cristaux de paraffine. Puis, dans la partie II entre la Θ_{cc} et une température Θ_i nous avons une variation linéaire des cristaux de paraffine qui correspond à la quantité de cristaux de paraffine qui apparaîtrait sans enrichissement. Dans la troisième partie, entre la température Θ_i et la température de la paroi, nous avons une quantité de cristaux qui évolue avec le temps grâce à l'enrichissement.

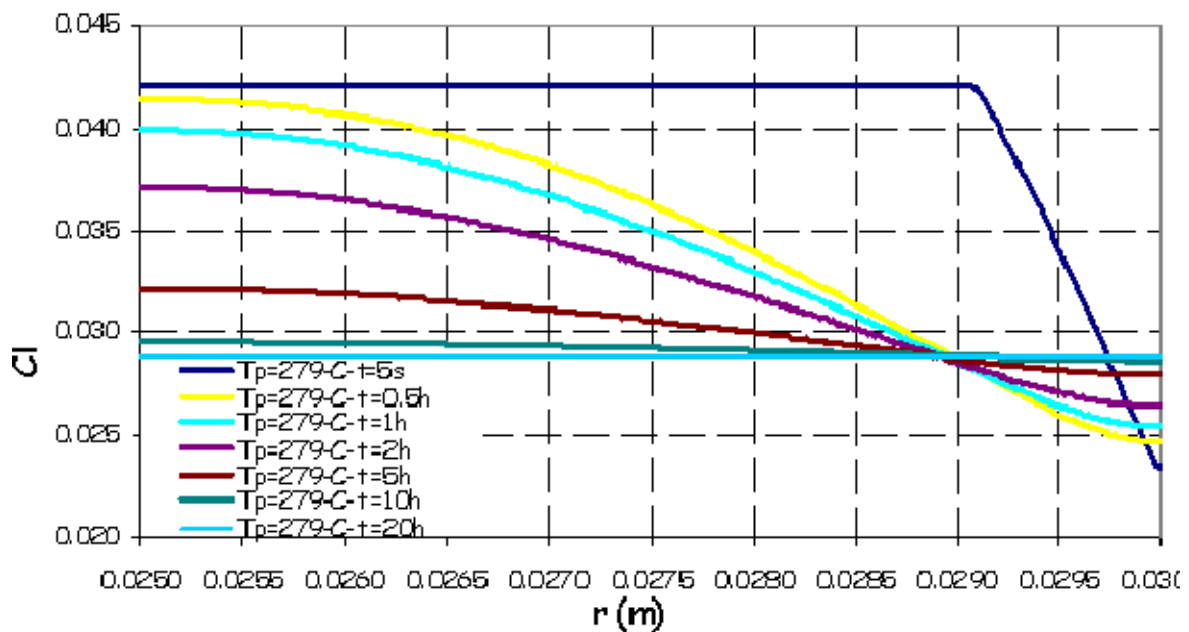


Fig- VI-19: Évolution de la concentration de la paraffine dissoute dans l'entrefer à différents instants.

La figure Fig-VI-21 représente l'évolution de la vitesse angulaire dans l'entrefer. Le régime stationnaire est atteint au bout de vingt heures. Nous constatons sur ces courbes qu'il y a une couche de matière qui tourne à la même vitesse que le cylindre extérieur. Cette couche se comporte comme un "solide" et la formulation mathématique du Lagrangien augmenté nous donne strictement $\underline{\underline{D}}=0$ dans cette zone, contrairement à un modèle régularisé classique. Nous la considérons désormais comme étant le dépôt de paraffine. L'épaisseur de ce dépôt (et sa composition) évolue avec le temps. La figure Fig-VI-22 traduit cette évolution temporelle. Cette courbe peut être divisée en trois parties distinctes. Sur les cent premières seconde le dépôt augmente brutalement pour atteindre une épaisseur de 0.09 mm. Cette croissance brutale est due aux effets thermiques uniquement puisque l'établissement du régime thermique

se fait rapidement et par conséquent les cristaux de paraffine qui sont apparus à cause de la température ont suffi pour générer une contrainte seuil plus grande que la distribution de la contrainte de cisaillement dans cette zone. La deuxième phase va de cent secondes à douze heures, le dépôt croît de manière progressive pour atteindre une épaisseur asymptote de 0.46 mm. Cette augmentation lente peut être expliquée par l'action de la diffusion moléculaire qui est beaucoup plus lente. En effet, par le biais de la diffusion moléculaire, la couche fluide près de la paroi interne de la chemise de déposition est enrichie en cristaux de paraffines comme le montre la figure Fig-VI-20 et par conséquent la contrainte seuil devient progressivement plus élevée que la distribution de la contrainte de cisaillement. Ainsi une zone non cisailée se forme au cours du temps. Pendant la troisième phase, au delà de douze heures, l'épaisseur du dépôt reste stable. L'explication de cette stabilité est relativement triviale puisque au bout d'un certain temps toutes les paraffines cristallisables ont cristallisées. Nous le vérifions sur la figure Fig-VI-20 puisque la quantité de cristaux de paraffine au bout de 10 heures varie très peu.

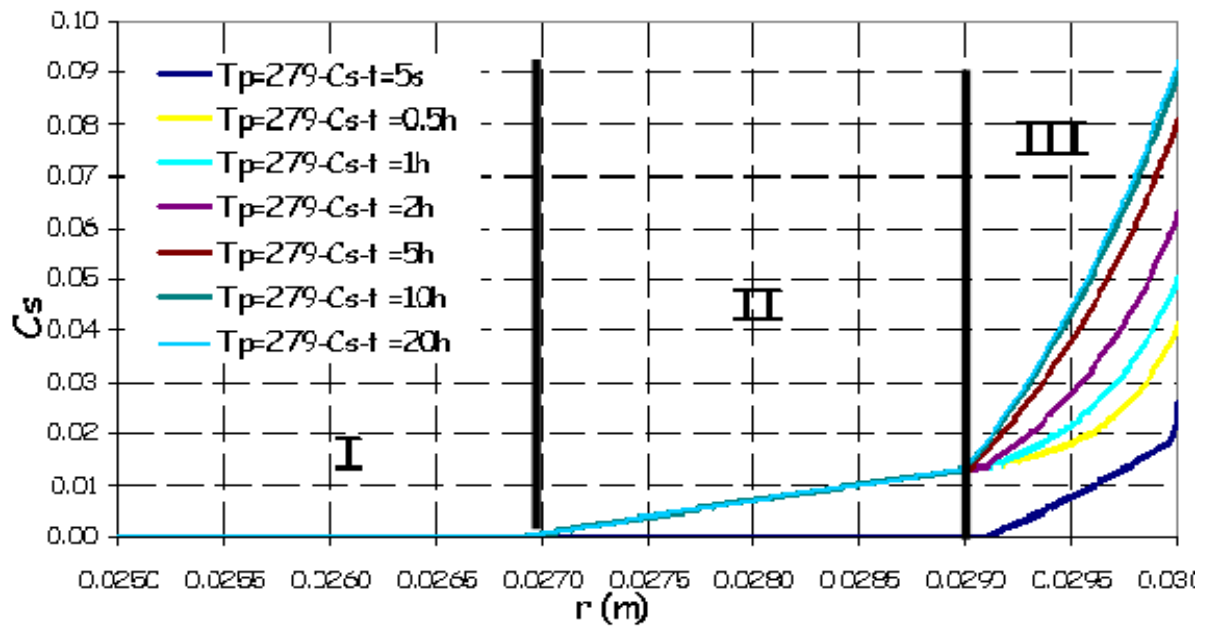


Fig- VI-20: Évolution de la concentration de la paraffine cristallisée dans l'entrefer à différents instants.

Les phases deux et trois peuvent être approchées par l'équation suivante :

$$e_d = \left(e_{\max} - (e_{\max} - e_i) \times \exp\left(-\frac{(t - t_i)}{t^*}\right) \right) \quad (\text{VI.20})$$

ou e_i est l'épaisseur atteinte à cause des effets thermiques, t_i est le temps à partir duquel la diffusion moléculaire contrôle la formation du dépôt.

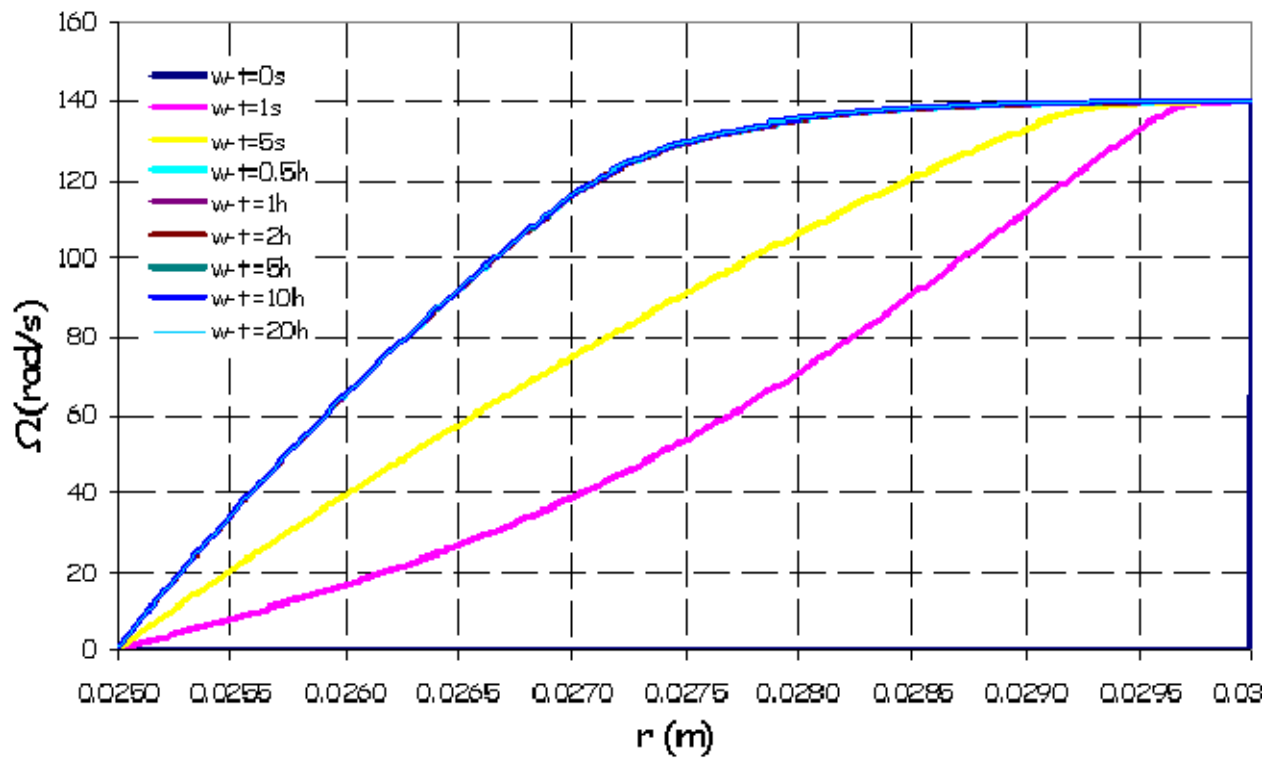


Fig- VI-21: Évolution de la vitesse angulaire dans l'entrefer à différents instants.

La figure Fig-VI-23 représente l'évolution de la contrainte seuil dans l'entrefer. Il est intéressant de constater que le modèle tel quel permet au dépôt formé de "vieillir" au cours du temps puisque la contrainte seuil à l'intérieur du dépôt continue à augmenter malgré le comportement statique de la couche.

Sur la Fig-VI-24, nous avons comparé l'évolution de l'épaisseur du dépôt avec l'isotherme de la température de cristallisation commençante. Notons que l'épaisseur du dépôt est constamment inférieure à celle que l'on obtient en regardant l'évolution de l'isotherme Θ_{cc} .

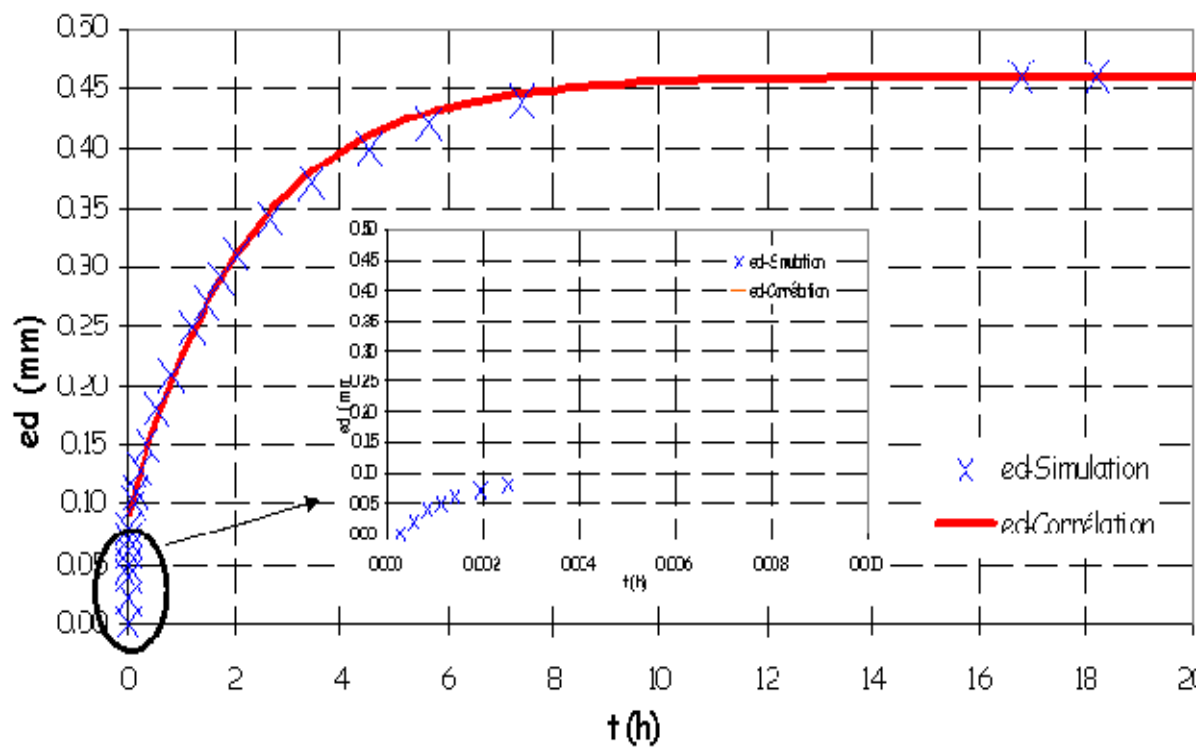


Fig- VI-22: Évolution temporelle de l'épaisseur du dépôt dans l'entrefer.

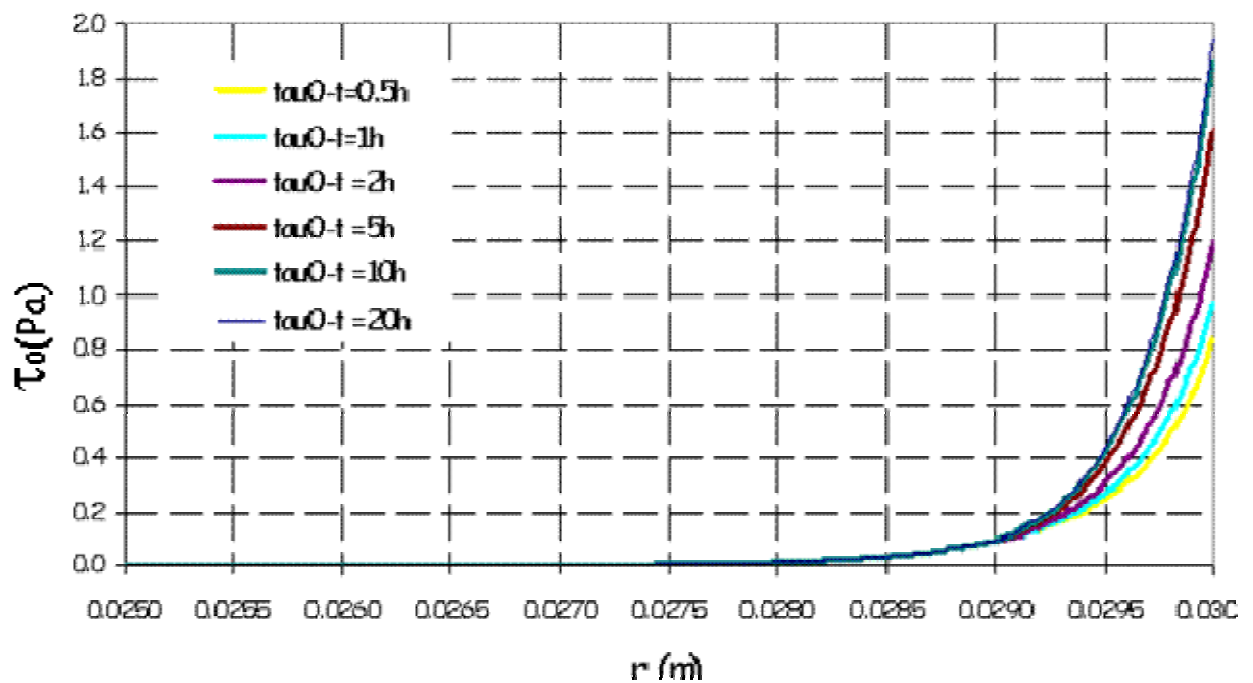


Fig- VI-23: Évolution de la contrainte seuil dans l'entrefer à différents instants.

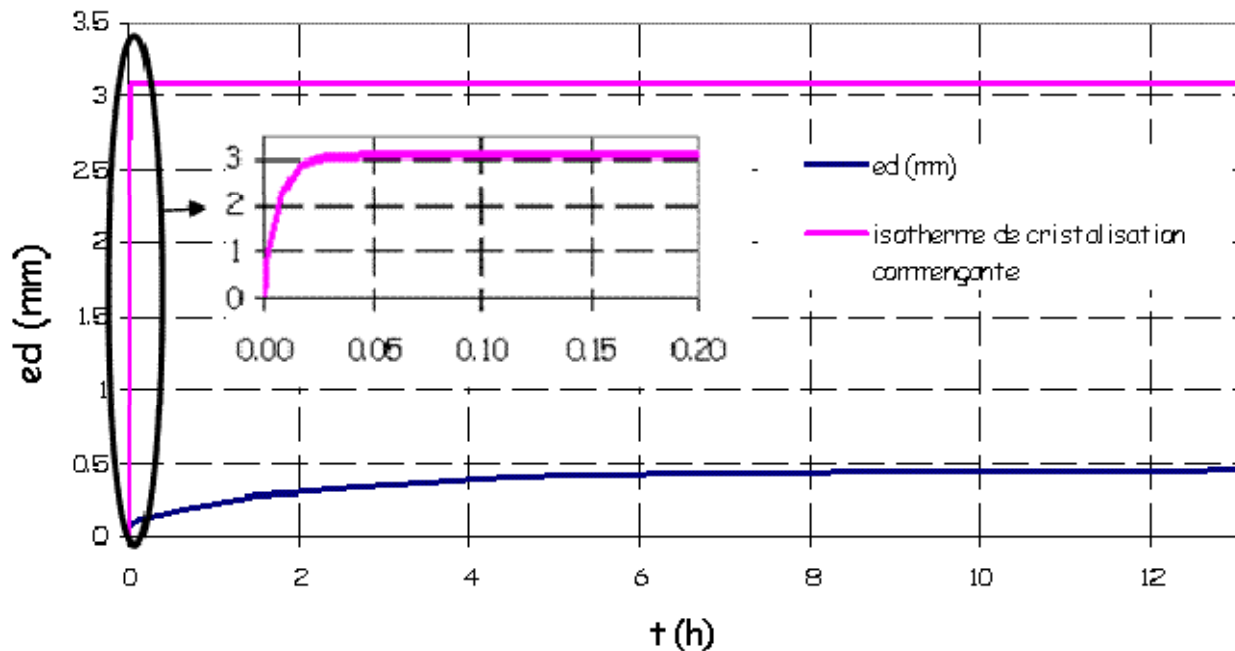


Fig- VI-24: Comparaison de l'épaisseur du dépôt avec l'isotherme de cristallisation commençante.

VI.4.3 Étude paramétrique:

L'adéquation des résultats numériques fournis par le modèle avec les données expérimentales dépendra de la qualité des paramètres d'entrée. L'objet de cette section est d'étudier la sensibilité des résultats numériques aux variations de certains de ces paramètres d'entrée. Afin de limiter le nombre de simulations, nous nous intéresserons en particulier à l'influence de deux paramètres liés au fluide à savoir, la loi rhéologique qui est responsable de l'apparition du dépôt de paraffine, et le coefficient de diffusion qui contrôle l'enrichissement en paraffines dissoutes. Nous allons également tester l'influence de deux paramètres opératoires à savoir la vitesse angulaire et le gradient de température (au travers de la température de la paroi interne de la chemise de déposition) qui nous paraissent jouer un rôle essentiel dans l'approche du phénomène de dépôt que l'on propose.

VI.4.3.1 Incidence des paramètres opératoires

VI.4.3.1.1 Influence de la vitesse angulaire:

Nous avons simulé l'écoulement du brut HK à différentes vitesses angulaires autour du cas de référence, à savoir 5.2 rad/s, 52 rad/s, 104 rad/s, 156 rad/s et 208 rad/s. Pour toutes les simulations, les températures à la paroi interne de la chemise de déposition et sur le cylindre intérieur sont fixées respectivement à 279 K et 303 K et le coefficient de diffusion est fixé à $D_m = 10^{-9}$ c'est à dire les valeurs prises pour le cas de référence.

L'évolution de la température, de la concentration des paraffines solides et dissoutes et de la contrainte seuil restent inchangées pour ces différentes simulations.

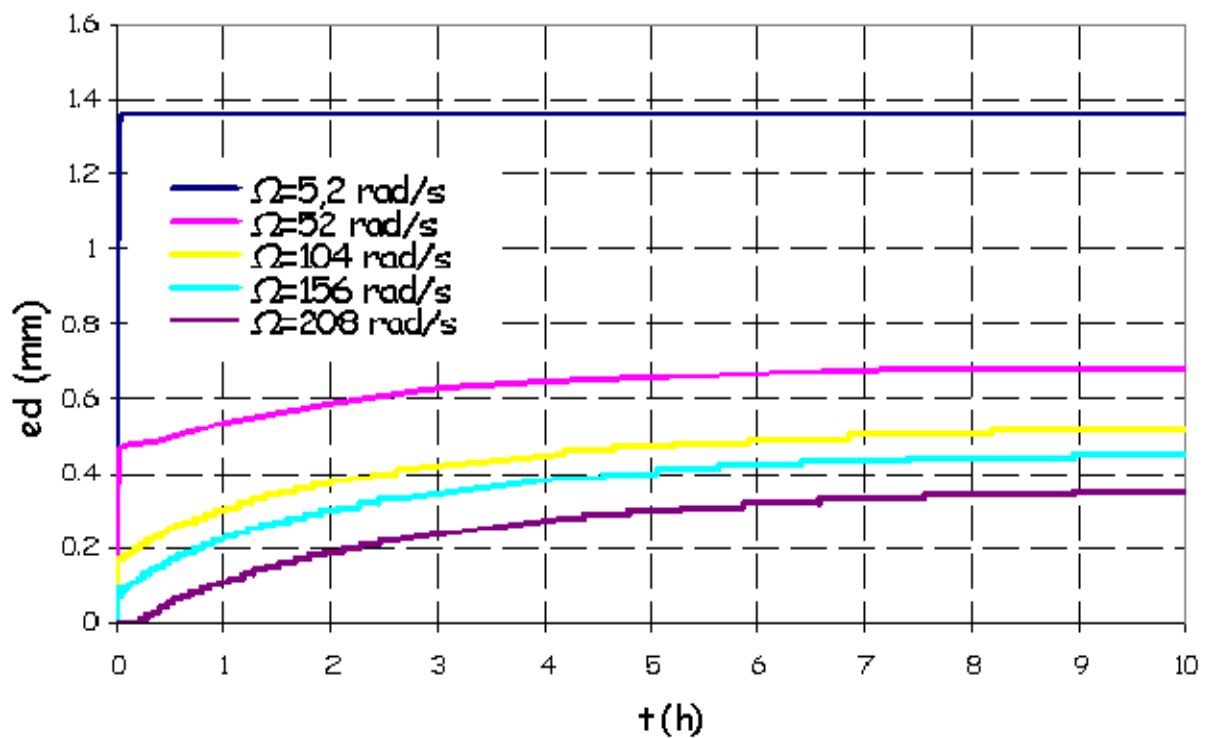


Fig- VI-25: Évolution de l'épaisseur du dépôt de paraffine dans l'entrefer pour différentes vitesses angulaires.

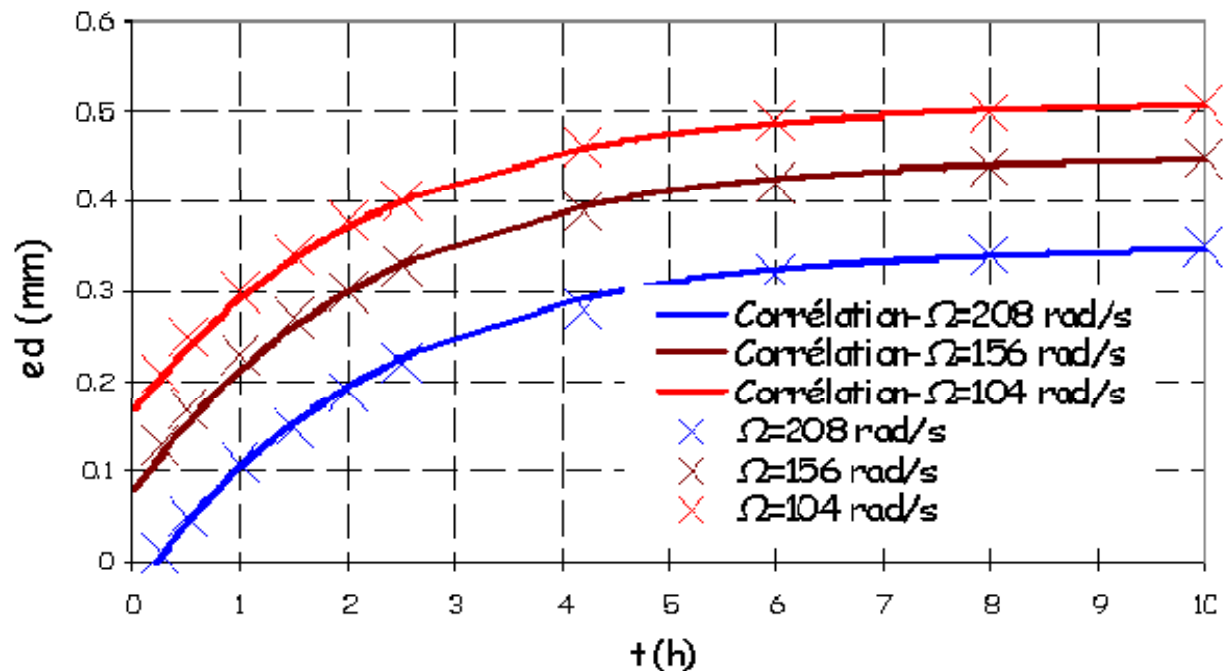


Fig- VI-26: Corrélations de l'évolution temporelle du dépôt de paraffine dans l'entrefer .

Les courbes de la figure VI-25 représentent l'évolution temporelle de l'épaisseur du dépôt de paraffine dans l'entrefer pour les différentes vitesses angulaires. De manière générale, nous observons que plus la vitesse angulaire est grande et plus l'épaisseur du dépôt diminue. Ce résultat est cohérent avec notre approche puisque, en augmentant la vitesse angulaire, la contrainte de cisaillement dans l'entrefer augmente également alors que la contrainte seuil reste la même; nous avons donc une diminution de l'épaisseur du dépôt. Nous constatons également que, lorsque la vitesse angulaire est de 208 rad/s, le dépôt de paraffine commence à se former au bout d'une quinzaine de minutes. Cela peut s'expliquer par le fait que la contrainte seuil générée initialement par les effets thermiques est plus petite que la contrainte de cisaillement à la paroi. Dans ce cas, le dépôt ne peut se former qu'une fois que l'enrichissement en cristaux de paraffine est suffisant pour augmenter la contrainte seuil de telle sorte qu'elle dépasse la contrainte de cisaillement à la paroi. De manière plus générale, quand la vitesse angulaire est suffisamment grande, l'enrichissement en cristaux de paraffine est à l'origine de la formation du dépôt ($\Omega = 208 \text{ rad/s}$). A contrario, quand la vitesse angulaire est petite, ce sont les effets thermiques qui initient le dépôt ($\Omega = 5.2 \text{ rad/s}$). Entre ces deux cas extrêmes, c'est la combinaison des deux phénomènes qui gouverne la création et

le développement du dépôt i.e. on obtient une épaisseur de dépôt rapidement dès les premiers instants à cause des effets thermiques puis nous avons une évolution progressive vers une épaisseur du dépôt limite due à la diffusion moléculaire qui est relativement lente.

La partie du dépôt formée par la diffusion moléculaire peut être corrélée par l'équation (VI.20) comme le montrent les courbes de la figure VI-26.

Quelque soit la simulation, le temps caractéristique (intersection entre la pente à l'origine avec l'épaisseur asymptote) est constant de l'ordre de deux heures et demi même si l'épaisseur maximale augmente lorsque la vitesse angulaire diminue.

VI.4.3.1.2 Influence du gradient de température:

Dans ce paragraphe, nous évaluons l'influence du gradient thermique, via la température de paroi de la chemise de déposition, sur la formation du dépôt de paraffine. Pour ce faire, nous avons simulé l'écoulement du brut HK dans quatre cas de figures différents autour du cas de base avec des températures de paroi du cylindre extérieur différentes à savoir $\Theta_p = 276K$, $\Theta_p = 279K$, $\Theta_p = 282K$ et $\Theta_p = 284K$. La vitesse de rotation, le coefficient de diffusion et la température du cylindre intérieur sont fixés respectivement pour les quatre tests à $\Omega = 52 \text{ rad/s}$, $D_m = 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ et $\Theta_i = 303K$. La loi de comportement du brut HK ainsi que le modèle thermodynamique restent inchangés pour les quatre tests numériques.

La figure Fig VI-27 représente l'évolution de l'épaisseur du dépôt de paraffine au cours du temps pour les quatre simulations numériques. Quelque soit l'essai, on constate que le dépôt croît au cours du temps et atteint une épaisseur asymptote. En regardant plus précisément ces évolutions, on constate que plus la température de la paroi du cylindre extérieur est froide plus l'épaisseur finale est grande. Ce constat corrobore les essais expérimentaux et peut s'expliquer par le fait que plus la température de la paroi est froide et plus la quantité de paraffine cristallisable est importante. D'autre part on remarque que le dépôt de paraffine ne se forme qu'à partir d'une heure pour le cas où $\Theta_p = 284K$ et au bout de quelques minutes pour le cas où $\Theta_p = 282K$. En revanche, on a un dépôt quasi immédiat pour les deux autres cas. Cela peut s'expliquer par le fait que, pour les deux premiers cas, les effets thermiques n'ont pas suffi à engendrer une contrainte seuil suffisamment grande pour former un dépôt et que c'est

essentiellement l'enrichissement en normales paraffines par le biais de la diffusion moléculaire qui a augmenté cette contrainte seuil et donc, au bout d'un certain temps, a initié la formation d'un dépôt. A contrario, lorsque la température de paroi est égale à 279 K, nous avons l'apparition d'un dépôt (couche gélifiée) dès les premiers instants, due aux effets thermiques, puis l'enrichissement en normales paraffines fait croître cette épaisseur pour atteindre la valeur finale. Finalement, dans le cas où $\Theta_p = 276K$, on a quasiment l'épaisseur finale qui est atteinte dès les premières minutes, due aux effets thermiques; l'enrichissement en normales paraffines dans ce cas sert essentiellement à faire "vieillir" le dépôt en augmentant sa contrainte seuil.

Ces résultats sont très intéressants car ils permettent de montrer que la modélisation numérique et les essais du montage expérimental sont potentiellement aptes à rendre compte des situations rencontrées dans une conduite comme cela a été observé dans les essais de la boucle Lyre (voir chapitre III).

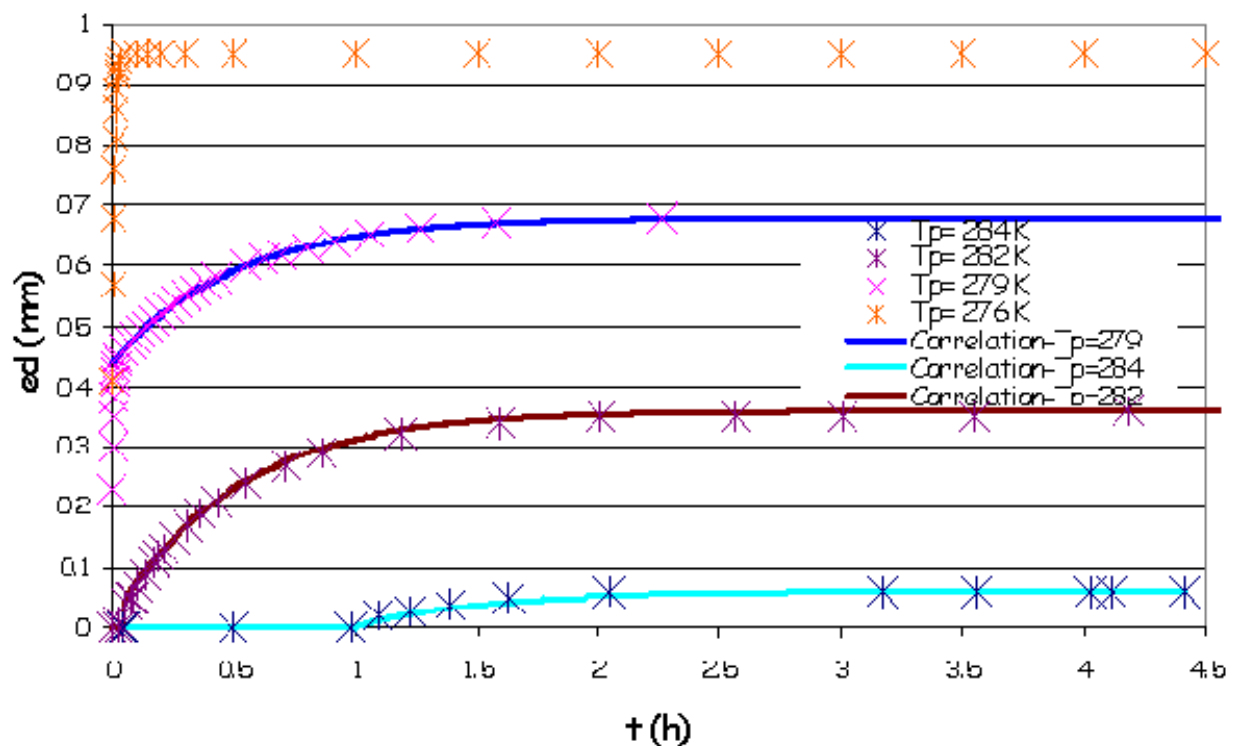


Fig- VI-27: Évolution temporelle du dépôt de paraffine dans l'entrefer pour différentes température de paroi du cylindre extérieur .

Pour les trois premiers cas (284K; 282K et 279K), la corrélation décrite par l'équation VI-20 permet de représenter la partie de l'évolution du dépôt générée par la diffusion moléculaire.

En règle générale, on constate que le temps caractéristique à tendance à rester stable lorsque la température de paroi croît: les temps caractéristiques des simulations numériques avec des températures de paroi extérieur égales à $\Theta_p = 279K$, $\Theta_p = 282K$ et $\Theta_p = 284K$ sont égaux à environ 0,5 h. Cela semble curieux et contradictoire avec les essais mais dans ces simulations nous avons considéré le coefficient de diffusion comme constant.

Il est intéressant de constater que nous avons qualitativement le même type de comportement lorsqu'on modifie la vitesse angulaire du cylindre extérieur ou lorsqu'on change la température de paroi du cylindre extérieur. Dans le premier cas, nous jouons sur la distribution des contraintes de cisaillement dans l'entrefer et dans le second cas, nous modifions la distribution de la contrainte seuil dans l'entrefer. Ces deux paramètres agissent donc en fait sur un nombre de Bingham qui exprimerait le rapport de la contrainte seuil du fluide sur les contraintes de cisaillement de l'écoulement.

VI.4.3.2 Incidence des paramètres du brut

VI.4.3.2.1 Influence du coefficient de diffusion:

Le choix du coefficient de diffusion est primordial pour rendre compte de l'évolution de l'épaisseur du dépôt de paraffine. Nous avons simulé l'écoulement du brut HK à quatre reprises en changeant uniquement ce coefficient de diffusion par rapport au cas de base. La vitesse de rotation, la température à la paroi intérieure et extérieure sont fixées respectivement à 200 rad/s, 303 K et 279 K. les coefficients de diffusion choisis sont $10^{-9} m^2 / s$, $5 \times 10^{-9} m^2 / s$, $10^{-8} m^2 / s$ et $10^{-7} m^2 / s$.

La figure VI-28 représente l'évolution de l'épaisseur du dépôt de paraffine au cours de temps pour les quatre simulations ainsi que les corrélations qui leurs sont associées. Nous constatons que, quelque soit le cas de figure, l'épaisseur asymptote reste inchangée. Cela signifie que le coefficient de diffusion n'a pas d'influence sur l'épaisseur finale. En revanche nous constatons clairement que, selon l'essai numérique, on atteint plus au moins vite cette valeur finale. Plus le coefficient de diffusion est grand, plus l'établissement de l'épaisseur du dépôt est rapide. La figure VI-29 renforce cet argument puisque nous avons la même distribution de cristaux de paraffines dans l'entrefer pour les différents coefficients de diffusion mais à des temps sensiblement différents. De plus, pour la simulation où le coefficient de diffusion est le plus

petit, le dépôt n'apparaît pas immédiatement alors que pour les autres simulations nous avons un dépôt qui apparaît dès les premiers instants. Cela peut s'expliquer par le fait que, plus la diffusion moléculaire est rapide, plus l'enrichissement en paraffine l'est aussi et donc plus la contrainte seuil atteint rapidement une valeur suffisante pour former le dépôt donc dès les premiers instants.

L'équation (VI-20) est utilisée pour corréler les quatre simulations. Les temps caractéristiques (intersection de la pente à l'origine avec l'épaisseur asymptote) correspondants pour les simulations avec $D_m = 10^{-9} \text{ m}^2 / \text{s}$, $D_m = 5 \times 10^{-9} \text{ m}^2 / \text{s}$, $D_m = 10^{-8} \text{ m}^2 / \text{s}$ et $D_m = 10^{-7} \text{ m}^2 / \text{s}$ sont respectivement $2.5h$, $0.5h$, $0.25h$ et $0.025h$.

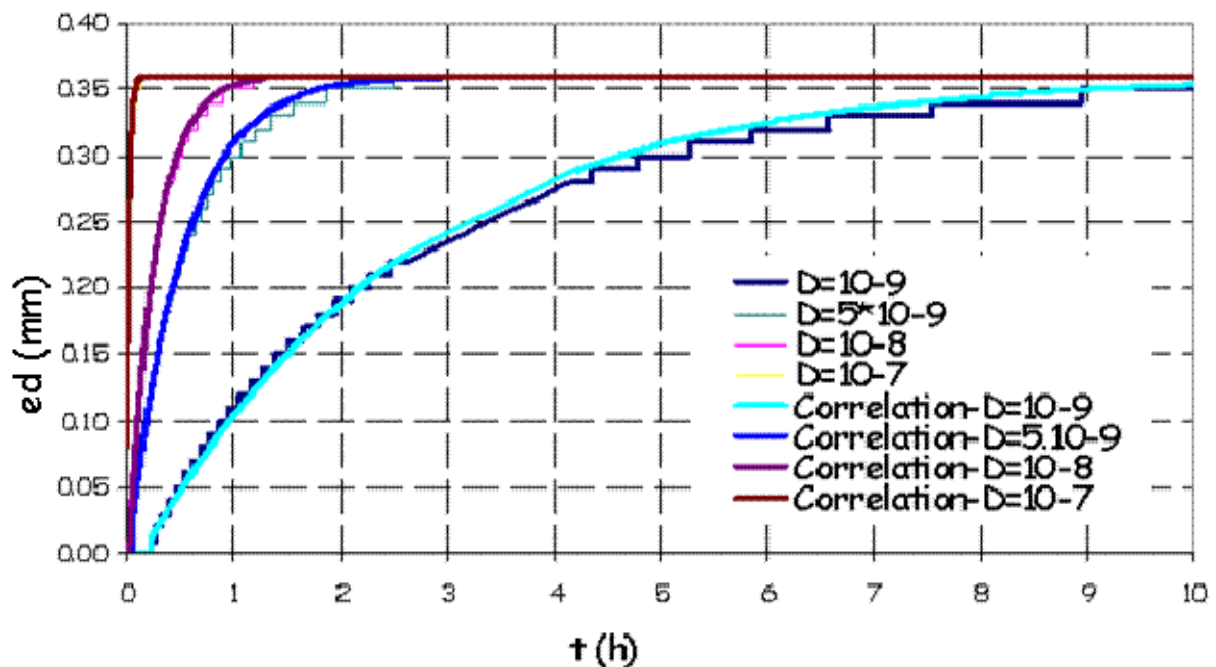


Fig- VI-28: L'influence du coefficient de diffusion sur l'évolution de l'épaisseur du dépôt

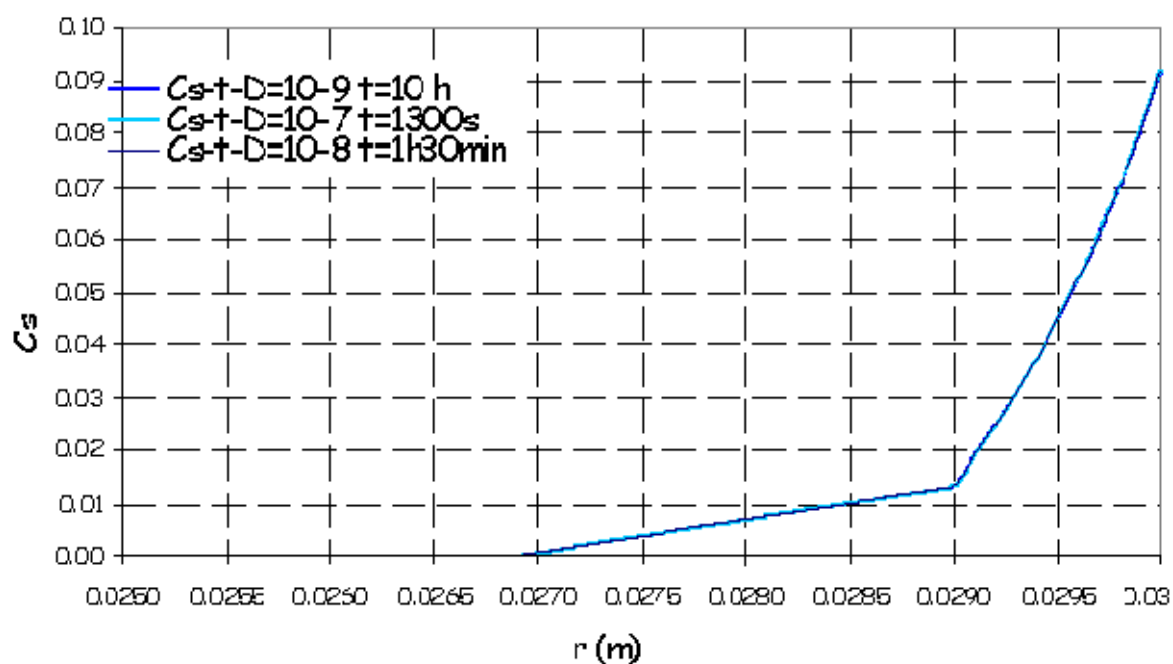


Fig.- VI-29: l'évolution des cristaux de paraffine dans l'entrefer pour les différentes simulations.

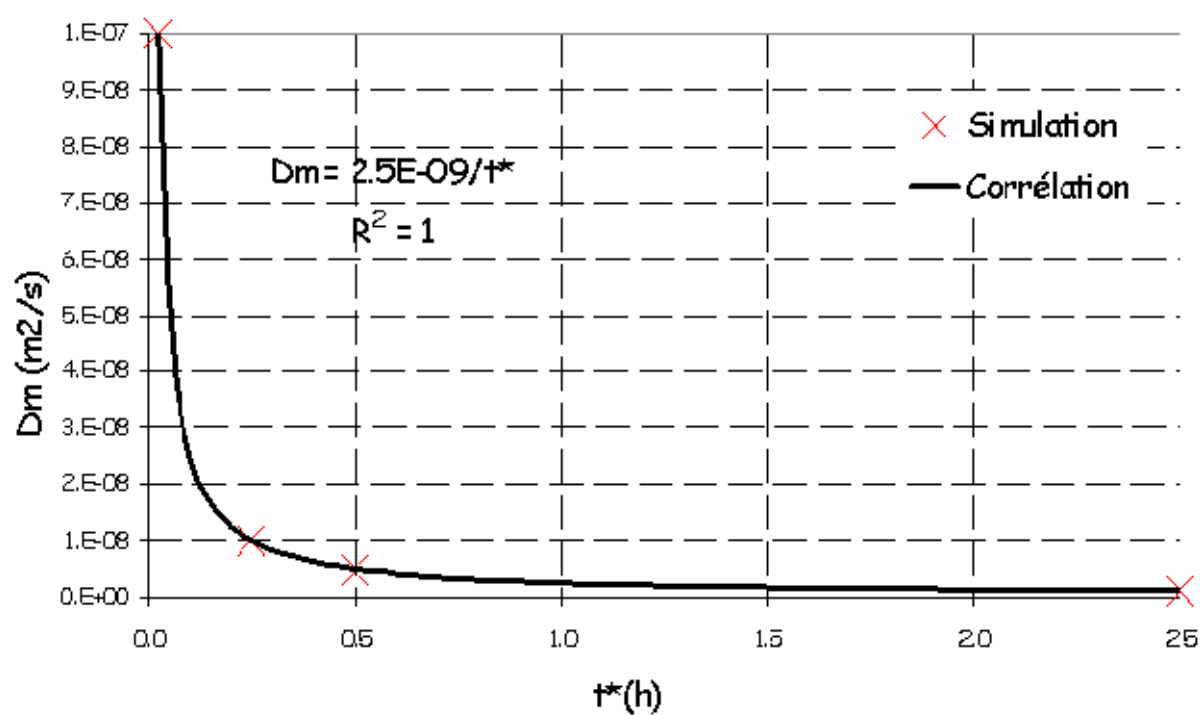


Fig.- VI-30: Relation entre le temps caractéristique et le coefficient de diffusion.

Nous avons tracé sur la figure Fig-VI-30 l'évolution du coefficient de diffusion en fonction du temps caractéristique ainsi que la corrélation qui lui est associée. Nous notons que le coefficient de diffusion est inversement proportionnel au temps caractéristique et suit de manière exacte l'équation suivante:

$$D_m (m^2 / s) = \frac{2.5 \times 10^{-9}}{t^* (h)} \quad (VI.21)$$

Cette corrélation, si elle est vérifiée expérimentalement, pourrait permettre à terme d'avoir accès à une détermination expérimentale simple de ce coefficient de diffusion en fonction du fluide et de conditions opératoires connues.

VI.4.3.2.2 Influence de la contrainte seuil:

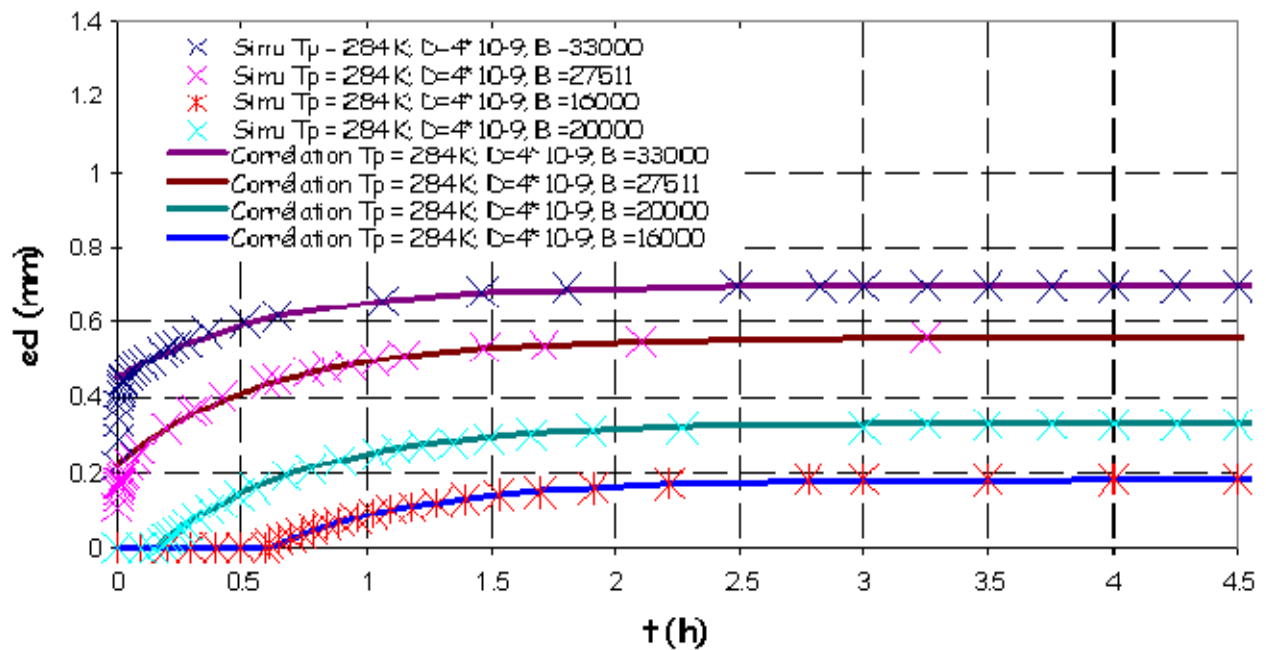


Fig- VI-31: L'influence de la contrainte seuil sur l'évolution de l'épaisseur du dépôt.

Nous testons l'influence de la variation de la contrainte seuil sur l'évolution de l'épaisseur de dépôt de paraffine. Nous rappelons que la relation donnant la contrainte seuil en fonction de la température et des cristaux de paraffines, établie dans le chapitre V, s'écrit de la manière suivante:

$$\tau_0(\Theta, C_s) = A e^{B \left(\frac{1}{\Theta} - \frac{1}{\Theta_{cc}} \right)} \times e^{D(\Theta)C_s} \quad \text{avec } A = 0.0013 Pa, B = 33150 \text{ et } D(\Theta) = 2.15 \times \Theta - 583.5$$

Pour faire varier la contrainte seuil, nous allons faire varier le paramètre B arbitrairement.

Nous avons effectué quatre simulations numériques avec quatre paramètres arbitraires B à savoir $B = 33150$, $B = 27511$, $B = 20000$ et $B = 16000$. La vitesse de rotation, la température de la paroi du cylindre intérieur et extérieur et le coefficient de diffusion sont fixés pour les quatre simulations à $\Omega = 5,2 rad / s$, $\Theta_i = 303 K$, $\Theta_p = 284 K$ et $D_m = 4 \times 10^{-9} m^2 / s$.

La figure VI-31 représente l'évolution de l'épaisseur du dépôt de paraffine pour les quatre simulations. Nous constatons les mêmes types d'évolution de l'épaisseur du dépôt que celles observées dans les paragraphes VI.4.3.1.1 et VI.4.3.1.2, où on a fait varier respectivement la vitesse de rotation et le gradient de température à la paroi, i.e. en diminuant le paramètre B nous favorisons la construction du dépôt de paraffine par le mécanisme de diffusion moléculaire. D'ailleurs pour $B = 16000$ et $B = 20000$, le dépôt commence à se former respectivement au bout de 0.6 h et 0.25 h. Pour $B = 27511$ et $B = 33150$, nous avons une épaisseur de dépôt initiale respectivement égale à 0.23 mm et 0.45 mm et une épaisseur de dépôt finale respectivement égale à 0.55 mm et 0.7 mm. En règle générale, nous pouvons dire que lorsque nous faisons varier le paramètre B, nous ajustons trois résultats, à savoir le moment à partir duquel le dépôt commence à se former, l'épaisseur initiale due aux effets thermiques uniquement et l'épaisseur asymptote. Une fois de plus, nous constatons que le temps caractéristique pour atteindre l'épaisseur finale reste inchangé quelque soit la valeur du paramètre B.

$\Omega_e (rad / s)$	$\Theta_b (K)$	$\Theta_a (K)$	$\rho_f (Kg / m^3)$	$C_f (Kg / m^3)$	$\lambda_f (Wm^{-1} K^{-1})$	$D_m (m^2 s^{-1})$	B
Cas de base							
104	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	33150
Étude paramétrique: Ω_e							
5.2	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	33150
52	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	33150
104	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	33150
156	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	33150
208	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	33150
Étude paramétrique: Θ_b							
52	276	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	33150
52	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	33150
52	282	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	33150
52	274	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	33150
Étude paramétrique: D_m							
200	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	33150
200	279	303	872.3	2000	0.2	$5 \cdot 10^{-9}$	33150
200	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-8}	33150
200	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-7}	33150
Étude paramétrique: B							
5.2	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	33150
5.2	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	27511
5.2	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	20000
5.2	279	303	872.3	2000	0.2	10^{-9}	16000

Tableau VI-4: Paramètres de simulations des différents cas numériques.

VI.4.4 Confrontations des résultats numériques avec l'expérience:

VI.4.4.1 Essai test-2

Dans ce paragraphe, nous confrontons les résultats numériques aux mesures expérimentales. Pour ce faire, nous avons, dans un premier temps, simulé numériquement l'écoulement du brut HK en respectant les mêmes conditions opératoires que celles du "test-2" à savoir le cylindre extérieur a une vitesse angulaire de 5.2 rad/s, les températures des parois des cylindres extérieur et intérieur à respectivement 284 K et 303 K. La corrélation utilisée pour la

contrainte seuil est celle établie dans le chapitre V-3 à savoir $\tau_0(\Theta, C_s) = A e^{B \left(\frac{1}{\Theta} - \frac{1}{\Theta_{cc}} \right)} \times e^{D(\Theta)C_s}$.

La variation de la consistance en fonction de la température et des cristaux de paraffine est égale à $K(\Theta, C_s) = A'(\Theta) \cdot e^{B'(\Theta)C_s}$. Nous utilisons la corrélation déterminée par DSC dans le chapitre V pour déterminer la quantité de paraffine cristallisée pour une température inférieure à Θ_{cc} : $C_s(\Theta, \Delta C_l) = (\beta \times \Theta + \varphi) \Delta C_l + C_{si}(\Theta)$ avec β et φ des constantes et $C_{si}(\Theta)$ la courbe déterminée par DSC pour le brut sans enrichissement et ΔC_l est l'enrichissement. Le temps caractéristique du test-2 déterminé via la corrélation VI-13 nous permet de fixer le coefficient de diffusion en utilisant la corrélation (VI.20) :

$$D_m (m^2 / s) = \frac{2.5 \times 10^{-9}}{0.6} \approx 4 \times 10^{-9} m^2 / s .$$

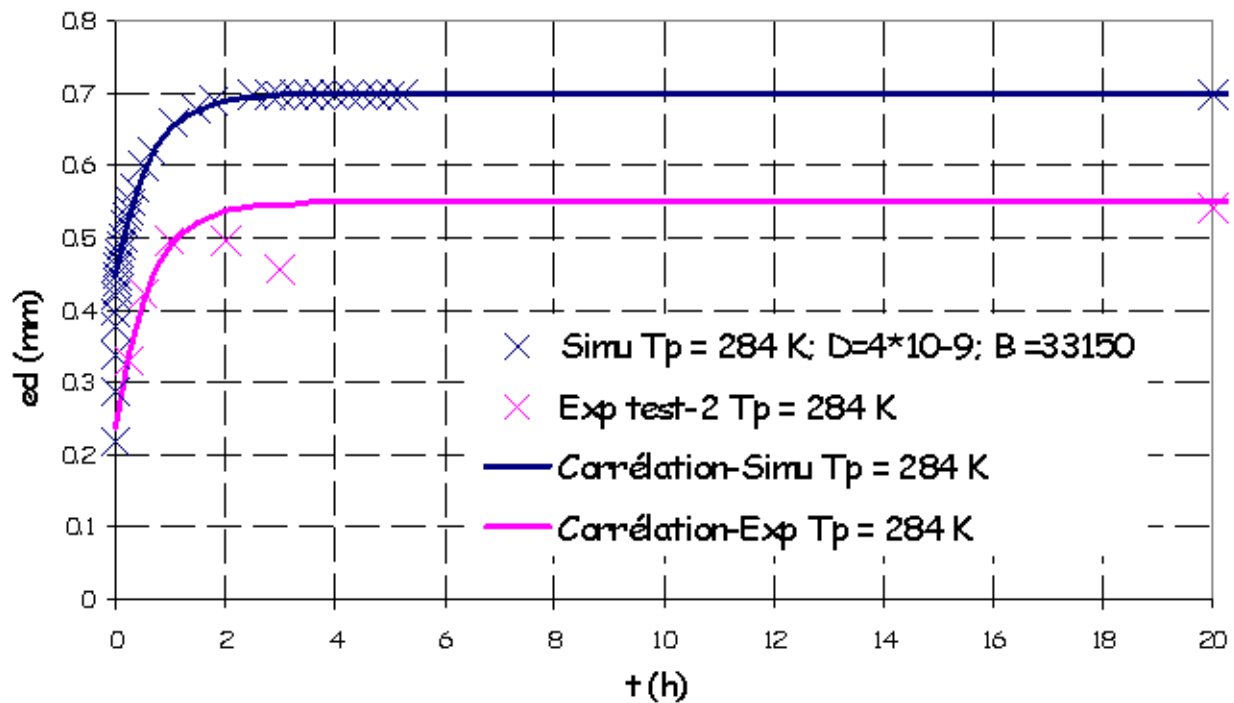


Fig.- VI-32: Comparaison entre l'évolution de l'épaisseur du dépôt expérimentale et numérique.

La figure VI-32 compare l'évolution de l'épaisseur du dépôt numériquement et expérimentalement. D'un point de vue qualitatif, nous constatons que l'évolution du dépôt obtenue numériquement ressemble à celle obtenue expérimentalement. Nous retrouvons les trois phases explicitées dans le paragraphe VI-4-2-1 i.e. nous avons une épaisseur initiale due aux effets purement thermique égale à 0.42 mm puis l'épaisseur croît progressivement grâce à la diffusion moléculaire pour tendre vers une valeur asymptote égale à 0.7 mm. On observe

que les valeurs initiale et finale diffèrent entre la simulation numérique et la mesure expérimentale. Cela peut s'expliquer de plusieurs façons:

- Comme indiqué dans la description du dispositif expérimental, la quantité du dépôt obtenu par prélèvement peut être inférieure au dépôt réel du fait de l'entraînement d'une partie du gel de faible contrainte seuil lors de la vidange.
- Les mesures qui nous ont permis de déterminer la loi rhéologique conduisent à des valeurs de contraintes seuil qui restent spéculatives: compte tenu de l'étude paramétrique on montre qu'en abaissant la contrainte seuil (en diminuant le paramètre B de 33.000 à 27.000) on peut ajuster correctement la courbe expérimentale comme le montre la figure VI-33.

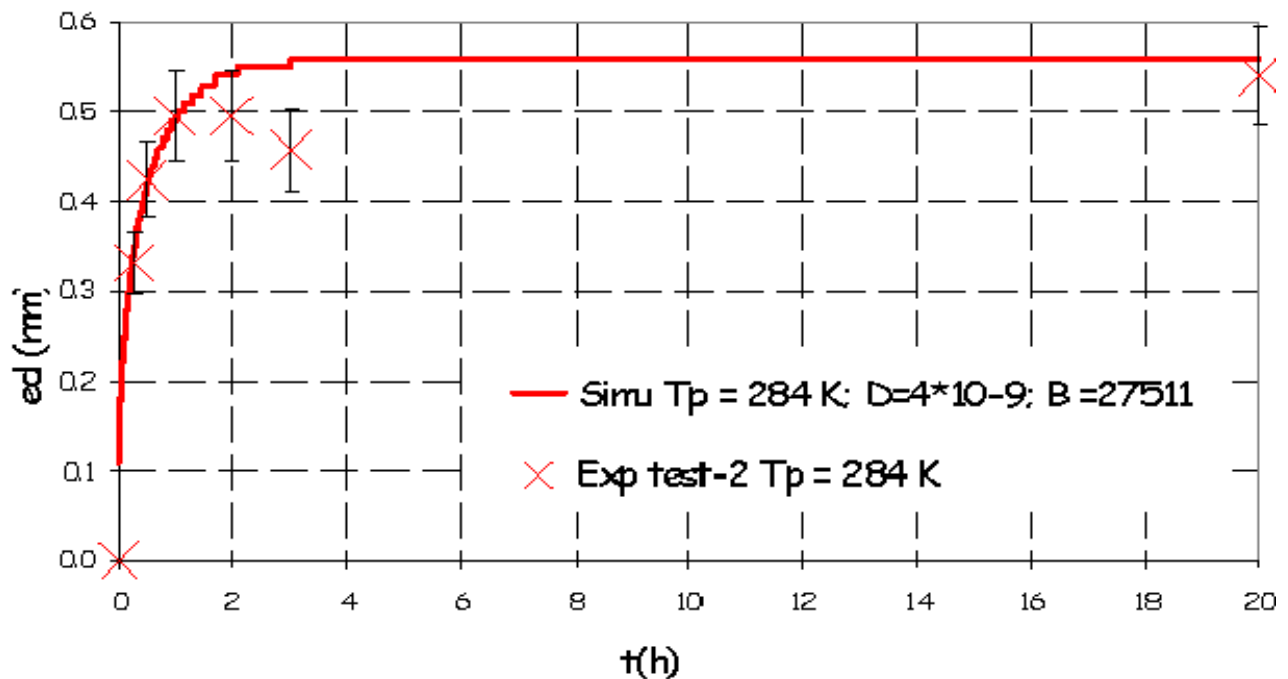


Fig.- VI-33: Comparaison entre l'évolution de l'épaisseur du dépôt expérimentale et numérique avec une tension seuil ajustée.

VI.4.4.2 Essai test-1-bis:

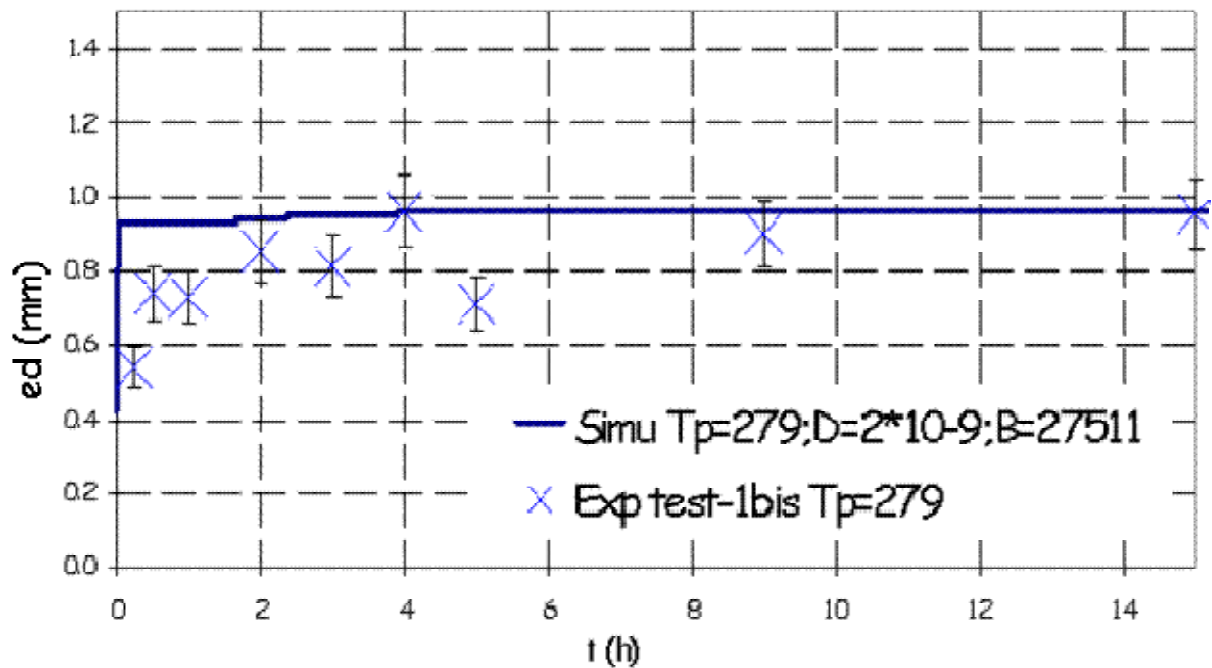


Fig.- VI-34: Comparaison entre l'évolution de l'épaisseur du dépôt expérimentale (test-1-bis) et numérique avec une tension seuil ajustée.

Si on applique les paramètres que l'on a maintenant ajustés sur le test 2 à savoir

$$D_m = \frac{2.5 \times 10^{-9}}{t^*} = \frac{2.5 \times 10^{-9}}{1.2} \approx 2 \times 10^{-9} \text{ m}^2 / \text{s} \quad \text{et le paramètre } B = 27500, \quad \text{au test-1-bis en}$$

conservant toutes les autres valeurs des paramètres physiques du brut et les paramètres de l'expérience (sauf bien entendu la température du cylindre extérieur) on obtient une valeur asymptotique du dépôt tout à fait satisfaisante. En revanche l'établissement de cette épaisseur est beaucoup plus rapide que ce que l'on mesure expérimentalement (Cf. figure VI 34). L'une des raisons qui pourrait expliquer ce décalage est le fait que l'observation du dépôt de paraffine dans les premières minutes peut être biaisée par le fait que la partie la plus fragile du dépôt tombe lors de la vidange.

VI.5 Conclusion

L'objectif principal de cette étude est atteint à savoir que nous disposons, désormais, d'un dispositif expérimental permettant de créer des dépôts de paraffine dans des conditions de température et de cisaillement donnés en utilisant une faible quantité de pétrole brut. Cet instrument nous permet de suivre l'évolution du dépôt de paraffine au cours de temps en pesant à chaque instant la masse de dépôt créée. Une campagne d'essais a été menée avec le brut HK à deux températures différentes. Une corrélation satisfaisante donnant l'évolution du dépôt en fonction du temps a été trouvée. Cette corrélation nous donne en particulier un temps caractéristique et une épaisseur initiale et asymptote qui diffèrent avec la température. Suite à cette campagne d'essais, quelques conclusions peuvent être données:

- Une couche de dépôt est créée dès les premiers instants initiée par les effets thermiques.
- Une épaisseur asymptote est atteinte au bout de quelques heures due à la cristallisation complète de toute la paraffine cristallisable à une température donnée.
- L'augmentation du gradient thermique, par l'abaissement de la température de paroi où va se créer la dépôt, conduit à une épaisseur finale et à un temps caractéristique d'évolution de l'épaisseur du dépôt plus important.
- Le dépôt obtenu au bout de quelques heures a une contrainte seuil et une viscosité plastique plus importante que celui qui se forme dans les premières heures.

Bien entendu cet outil expérimental doit maintenant être utilisé intensivement en faisant varier plus largement les paramètres d'étude.

Une étude numérique a ensuite été réalisée afin de mieux comprendre le fonctionnement de la création du dépôt. Un code de calcul "Couette Cylindrique" monodimensionnel a été implémenté se basant sur l'approche phénoménologique que nous soutenons dans cette thèse. Tout d'abord l'étude d'un cas de base nous a permis de dégager quelques similitudes qualitatives avec les phénomènes observés expérimentalement:

- un dépôt de paraffine se crée rapidement à cause des effets purement thermiques.
- nous avons une construction progressive de ce dépôt pour atteindre une épaisseur asymptote.

Une corrélation de même type que celle trouvée expérimentalement permet de lisser l'évolution numérique du dépôt de paraffine. Une étude paramétrique du modèle nous a permis de noter trois types de comportements quelque soit le paramètre que l'on fait varier:

- Le dépôt apparaît après un certain temps et tend progressivement vers une épaisseur finale. Dans ce cas, la diffusion moléculaire est la seule responsable de l'apparition de ce dépôt.
- Le dépôt apparaît très rapidement dans les premiers instants puis évolue progressivement vers une épaisseur finale. Ce dépôt provient de la combinaison des effets thermiques et de la diffusion moléculaire.
- Le dépôt atteint dès les premières minutes l'épaisseur finale. Les effets thermiques forment à eux seuls le dépôt. La diffusion moléculaire le fera vieillir.

Nous avons pu voir également que le coefficient de diffusion fixe le temps caractéristique de l'évolution de l'épaisseur du dépôt. Le dispositif expérimental permettra donc la détermination expérimentale aisée de la valeur du coefficient de diffusion.

Les confrontations de ce modèle avec les données obtenues expérimentalement sont qualitativement satisfaisantes mais diffèrent notamment sur l'épaisseur créée initialement par les effets thermiques. Toutefois un ajustement d'un coefficient dans la loi rhéologique nous a permis de faire correspondre calcul et expérience. À l'avenir, une attention particulière devra être portée à la détermination expérimentale de la loi rhéologique, ainsi qu'à la quantification du dépôt dans le montage expérimental notamment dans les premiers instants, car ces deux points peuvent être à l'origine des écarts entre expérience et calcul.

CHAPITRE VII: CONCLUSION GENERALE

Cette thèse nous a permis d'aborder, sous un angle différent de ce qui existe dans la littérature, le problème des dépôts de paraffine dans les conduites pétrolières durant le transport d'un brut paraffinique et de développer un outil numérique approprié. Nous avons, proposé d'utiliser la diffusion moléculaire non pas comme l'unique mécanisme responsable de la création du dépôt, comme cela est classiquement proposé dans la littérature, mais comme un mécanisme complémentaire d'enrichissement en paraffines induisant localement un changement de rhéologie près de la paroi. Finalement nous considérons que le brut paraffinique s'écoule dans un pipeline comme un fluide viscoplastique dont la viscosité plastique et la contrainte seuil dépendent de la température et de la teneur en cristaux de paraffines. Lorsque la température de l'environnement auquel le pipeline est soumis est supérieure à Θ_{CC} le brut se comporte comme un fluide newtonien; à contrario, si cette température est inférieure à Θ_{CC} , la couche de fluide près de la paroi interne du pipeline se comporte comme un fluide viscoplastique. Tout le travail développé expérimentalement et numériquement permet de montrer que cette approche est tout à fait réaliste. Elle permet en particulier d'expliquer un certain nombre d'observations faites sur la formation de ce dépôt telles que l'adhérence de ce dépôt à la paroi interne du pipeline ou bien encore l'évolution de sa composition (mélange de brut et de cristaux de paraffine).

Un modèle thermomécanique basé sur cette approche qualitative a été mis au point puis implémenté numériquement. Ce modèle est un couplage subtil entre la dynamique de l'écoulement, l'équilibre thermodynamique des normales paraffines et le transport de la paraffine dissoute représenté par une équation de Fick avec un terme puits dû à la cristallisation des paraffines. La loi de comportement du brut est une loi de Bingham dont les paramètres dépendent de la température et de la teneur en paraffine cristallisée. L'outil numérique développé est basé sur un précédent travail de thèse sur la gélification des bruts paraffiniques durant les phases d'arrêt de la production. Cet outil a été adapté à notre problématique. Le principal atout de cet outil est le fait que le modèle viscoplastique est

implémenté grâce à la technique du Lagrangien augmenté associée à un algorithme d'Uzawa afin de tenir compte de sa non-dérivabilité. Ainsi les zones non cisailées sont déterminées de manière exacte. Ce dernier point est essentiel dans notre travail puisque le dépôt, considéré comme une zone non cisailée, résulte de l'arrêt d'une couche fluide sous les effets d'un changement de rhéologie dû à la température et l'enrichissement local en paraffine. La géométrie du problème est discrétisée en 2D compte tenu des variations radiales et axiales attendues. Nous avons montré que cet outil numérique permet de reproduire la formation du dépôt de paraffine à la paroi d'une conduite selon les mécanismes prévus dans notre approche. Qualitativement, nous retrouvons les tendances observées expérimentalement dans les essais de la boucle LYRE. Toutefois, dans les conditions réelles d'écoulement en conduite, le code StarWaCs2D est trop coûteux en temps de calcul. Un outils simplifié qui tient compte du rapport de forme des conduites (StarWaCs1.5D) est développé (Vinay et al,2007) et en cours de test.

Nous avons donc été amenés à concevoir, fabriquer et valider un dispositif expérimental "Couette Cylindrique" simple capable de rendre compte des principaux mécanismes de dépôt, mais avec des quantités de fluides faibles et à des coûts expérimentaux maîtrisés. En parallèle nous avons développé un code de calcul dérivé de StarWaCs2D, mais adapté à ce type de géométrie et moins coûteux en temps de calcul. Les premiers résultats montrent que ce dispositif est adapté pour reproduire les dépôts de paraffine et peut fournir certains paramètres essentiels à la simulation numérique tel que le coefficient de diffusion. Toutefois, faute de temps, nous n'avons pu réaliser toute l'étude exhaustive des paramètres permettant d'utiliser pleinement les propriétés de ce dispositif. Cette étude devra être poursuivie afin d'élargir la base de données.

À l'issue de ce travail, et grâce aux outils développés au cours de cette thèse, nous pouvons proposer une méthodologie globale pour traiter le problème des dépôts de paraffine en conduite pour un brut spécifique. Pour ce faire, il faut disposer d'une trentaine de litres de brut.

1. Réaliser une analyse par DSC d'un échantillon de brut afin de déterminer ces caractéristiques à savoir sa température de cristallisation commençante, sa teneur en normales paraffines et l'évolution de sa courbe de fraction cristallisée en fonction de la température.

2. Les caractéristiques du brut vont nous permettre de mettre au point un programme d'essais sur l'installation "Couette Cylindrique" dans laquelle nous ferons varier plusieurs paramètres tels que la vitesse de rotation, la température de la paroi froide ou encore le temps de l'observation afin de représenter les différentes situations qui pourraient être rencontrées sur le terrain. Nous allons en particulier avoir accès aux profils d'épaisseurs en fonction du temps et aux échantillons prélevés du dépôt.
3. Les évolutions temporelles de l'épaisseur du dépôt vont nous permettre de déterminer le coefficient de diffusion et son évolution en fonction de la température via la détermination des temps caractéristiques à différentes températures.
4. Les échantillons de dépôts prélevés à différents instants vont nous permettre de faire des analyses de DSC afin d'avoir l'évolution de la fraction cristallisée des normales paraffines en fonction de la température. Cela nous permettra, d'une part, de déterminer l'enrichissement subi à ces instants, et d'autre part, de développer des corrélations donnant la quantité cristallisée en fonction de la température et de cet enrichissement en normales paraffines.
5. Les dépôts prélevés vont nous permettre aussi de faire une analyse rhéologique afin d'établir des corrélations donnant l'évolution (sous l'effet de l'enrichissement) de la loi de comportement en fonction de la température et de la teneur en normales paraffines.
6. Une fois le coefficient de diffusion déterminé et les corrélations de l'étape 5 et 6 établies, nous pouvons simuler l'écoulement de ce brut en conduite via le code numérique StarWacs1.5D afin de prévoir les problèmes de dépôt qui peuvent éventuellement se poser lors de la mise en production du champ et donc adapter une stratégie efficace pour traiter voire éviter ce dépôt.

Concernant les améliorations qui pourraient être apportées à ce travail, il faut signaler que nous avons travaillé uniquement avec des bruts paraffiniques dégazés dits bruts de stockage (en anglais "dead oil"). Cependant, dans la réalité le pétrole transporté l'est sous pression et dès lors, il existe dans la conduite un mélange d'huile et de gaz, sous forme dissout ou libre, (en anglais "live oil"). Sous forme dissout, le gaz ne va pas modifier significativement notre approche si ce n'est qu'il va modifier sensiblement (voir figure VII-1 à titre d'illustration) la loi de comportement du brut enrichi. Dans la méthodologie précédente il sera nécessaire

d'utiliser à l'étape 5 un rhéomètre sous pression et de travailler sur les dépôts gazés pour prendre en compte cet effet .

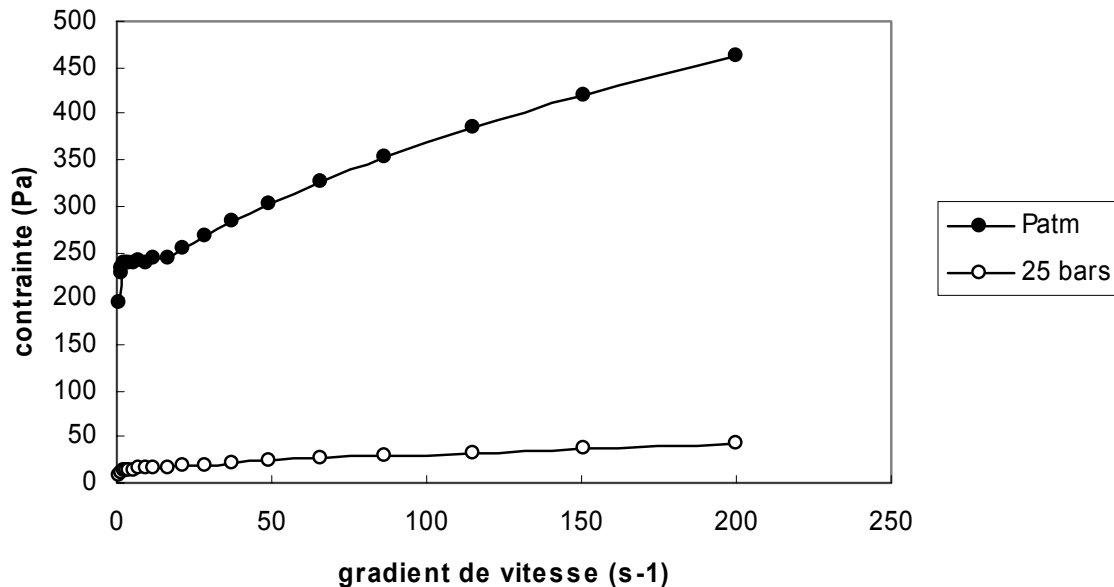


Fig.- VII-1:Exemple de courbe d'écoulement montrant l'effet du gaz dissout dans un brut paraffinique tiré une note technique interne IFP de Isabelle Hénaut.

En revanche, en présence d'une phase gaz libre, les investigations devront être reprises. En effet, même si dans les modèles existant de la littérature le problème est souvent traité à l'identique du monophasique en ne considérant le dépôt que sur la portion de conduite "mouillée" par le liquide, certaines observations faites par le passé à l'IFP (Maurel et al. 1999) ont montré que, dans certaines situations d'écoulement stratifié, on observait la construction d'un dépôt y compris sur la portion de conduite au contact du gaz. En l'état l'approche, et donc le modèle numérique, ne peuvent rendre compte de ces observations. C'est un point qui nous semble important et qui mériterait d'être approfondi à l'avenir.

BIBLIOGRAPHIE

AZEVEDO L.F.A., TEXEIRA A.M., *A Critical Review of the Modelling of Wax Deposition Mechanisms*, Petroleum Science and Technology, Vol.21, pages 393-408, 2003.

BARRY E.G., *Pumping non-newtonian waxy crude oils*, Journal of Institute of Petroleum, 57(554) ,76-85,1971.

BURGER E.D., PERKINS T.K., STRIEGLER J.H., *Studies of Wax Deposition in the Trans Alaska Pipeline*, Journal of Petroleum Technology, 1075-1086, June1981.

CALANGE S., *Modélisation thermodynamique compositionnelle de la cristallisation des bruts paraffiniques*, thèse, Université de Pau et des Pays de l'Adour, 1996.

CRADDOCK H.A, MUTCH K, SOWERBY K, JOHNSON M, MCGREGOR S., COOK J. AND STRACHAN C., *The application of wax dissolver in the enhancement of export line cleaning*, Society of Petroleum Engineers, Oilfield Chemistry in Houston, USA, 28 February-2 March 2007.

CUSSLER E.L., HUGHES S.E., WARD W.J. AND ARIS R., *Barrier Membranes* , J. Memb. Sci. 38 , 161 ,1988.

DANIAL S, ROBERTS J., *The Cliff head field development-flow assurance and production chemistry challenges in a marginal field context*, SPE , SPE 115612, September 2008.

DING J, ZHANG J., LI H, ZHANG F. AND YANG X, *Flow behavior of daqing waxy crude oil under simulated pipelining conditions*, Energy & Fuel , 20, 2531-2536,2006.

ECKSTEIN E C., *Particle migration in linear shear flow*, thesis, MIT, 1970.

EL-GAMAL I.M., GAD E.A.M., *Low temperature rheological behaviour of Umbaraka waxy crude and influence of flow improver*, Revue de l'Institut Français du Pétrole, 52 (3), 369-379, mai 1997.

GROVE G, SAETHER G AND ESTRADA GP, *Employing flow assurance in an offshore FEED study*, SPE, SPE 116254, September 2008.

HAMOUDA A.A., DAVIDSEN S., *An Approach for Simulation of Paraffin Deposition in Pipelines as a Function of Flow Characteristics With a Reference to Teesside Oil Pipeline*, Society of Petroleum Engineers, 28966, February 1995.

HANSEN J.H., FREDENSLUND A.A., PEDERSEN K.S., P.RØNNINGSEN H., *A Thermodynamic Model for Predicting Wax Formation in Crude Oils*, AIChE Journal, 34, 1937, 1988.

HENAULT I., *Influence du gaz dissous sur les propriétés rhéologiques des bruts paraffiniques*, Note Interne IFP, IH/cvdu/R071-037, 2007.

HERNANDEZ O.C., SARICA C., BRILL J.P., VOLK M., DELLE-CASE E., CREEK J., *Effect of flow regime, temperature gradient and shear stripping in single-phase paraffin deposition*, BHRG Multiphase technology Conference, San Remo, Italy, 2003.

HSU J.J.C., SANTAMARIA M.M., BRUBAKER J.P., *Wax Deposition of Waxy Live Crude's Under Turbulent Flow Conditions*, Society of Petroleum Engineers, 69th Annual Technical Conference and Exhibition in New Orleans, USA, September 1994.

JENNINGS D. W., and Weispfennig, K., *Effects of Shear and Temperature on Wax Deposition: Coldfinger Investigation with a Gulf of Mexico Crude Oil*, Energy & Fuel, 19, 1376-1386, 2005.

KOK M.V., SARACOGLU R.O., *Mathematical modelling of wax deposition in crude oil pipelines (comparative study)*, Department of Petroleum and Natural Gas Engineering, Middle East Technical University, 06531, Ankara Turkey, Petroleum Science and technology, 1121-1145, 2000.

LI H, ZHANG J., *A generalized model for predicting non-Newtonian viscosity of waxy crudes as a function of temperature and precipitated wax*, Fuel, 82, 1387-1397, 2003.

LUND H.J., *Investigation of paraffin deposition during single-phase flow in pipelines*, thesis, University of TULSA, 1998.

MANFIELD PH., NISBET W AND BALIUS J., *Understanding and mitigating wax deposition in a deepwater subsea gas/condensate flowline*, OTC, OTC 18834 1, May 2007.

MATLACH W.J. AND NEWBERRY M.E., *Paraffin deposition and rheological evolution of high wax content Altamont crude oils*, SPE, SPE 11851, May 1983.

MAUREL Ph., RUFFIER-MERAY P., BRUCY F., LAGRANGE Y., *Wax deposition testing in multiphase loop of Solaize*, rapport interne IFP, octobre 2000.

- MAUREL P., GATEAU P., BRUCY F., BARBEY A., BONNET N., PEURIERE E., *Bruts paraffiniques, Maîtrise des dépôts, Tests en boucle*, BHR Group Multiphase'99, 1999.
- MAURICIO M.H.P, AZEVEDO L.F.A., TEXEIRA A., PACIORNIK S., *In-situ optical microscopy of wax crystallization*, Acta Microscopica, 12 , Supplement C ,287-288, September 2003.
- MARCHUK. G.I, *Methods of numerical mathematics*, Springer, 1975.
- MISRA S., BARUAH S., SINGH K., *Paraffin problems in crude oil production and transportation: A Review*, SPE Production & Facilities, February 1995.
- PAPANASTASIOU, T.C. , *Flow of materials with yield*, J. of Rheology. 31(5), 385-404,1987.
- PEDERSEN K.S., *Prediction of Cloud Point Temperatures and Amount of Wax Precipitated* Society of Petroleum Engineers 27629.
- SINGH P., VENKATESAN R., FOGLER H.S., NAGARAJAN N., *Formation and aging of incipient thin film wax-oil gels*, AIChE Journal, vol. 46, No 5, May 2000
- SCHOPPA W., JAYAWARDENA S., AGBAJE T., EBERE D., LYER S, *Bonga-flow assurance benchmarking via field surveillance*, OTC, OTC 18949, May 2007.
- ZOUGARI M, JACOBS J., RATULOWSKI J, HAMMAMI A., BROZE G, FLANNERY M., STANKIEWICZ A. AND KARAN K, *Novel organic solids deposition and control device for live-oils: design and applications*, Energy & Fuel , 20, 1656-1663,2006.
- VENKATESAN R., NAGARAJAN N.R., PASO K., YI Y-B, SASTRY A.M., FOGLER H.S., *The strength of paraffin gels formed under static and flow conditions*, Chemical Engineering Science, 60, 3587-3598, 2005.
- VENKATESAN R., AND CREEK J.L., *Wax deposition during production operation: SOTA*, OTC, OTC 18798, May 2007.
- VIGNATI E., PIAZZA R., VISINTIN R.F.G., LAPASIN R, D'ANTONA P., LOCKHART T.P., *Wax crystallization and aggregation in a model crude oil*, J.Phys.Condens.Matter, 17, 3651-3660,2005.
- VINAY G., *Modélisation du redémarrage des écoulements de bruts paraffiniques dans les conduites pétrolières*, Thèse, École des Mines Paris et de L'IFP., 2005.

VINAY G., WACHS A AND FRIGAARD I, *Start-up transients and efficient computation of isothermal waxy crude oil flows*, J. Non-Newtonian Fluid Mech, 143, 141-156 , 2007

WON K. W., *Thermodynamics for Solid Solution-liquid-vapor equilibrium, wax phase formation from heavy hydrocarbon mixture*. Fluid Phase Equilib , 30, 265., 1986.

Annexe I: Validation du code "Couette Cylindrique" monodimensionnelle.

La résolution analytique d'un écoulement de couette, newtonien, stationnaire et isotherme, respectant les hypothèses H1 à H5 et les conditions aux limites définies dans le chapitre VI donne le profil de vitesse suivant :

$$\Omega(r) = \Omega_e \frac{a^2 b^2}{b^2 - a^2} \cdot \left(\frac{1}{a^2} - \frac{1}{r^2} \right)$$

La courbe de la figure 1 représente la comparaison entre l'évolution de la vitesse angulaire obtenue numériquement et celle analytique. Nous constatons de manière claire que ces deux courbes se confondent.

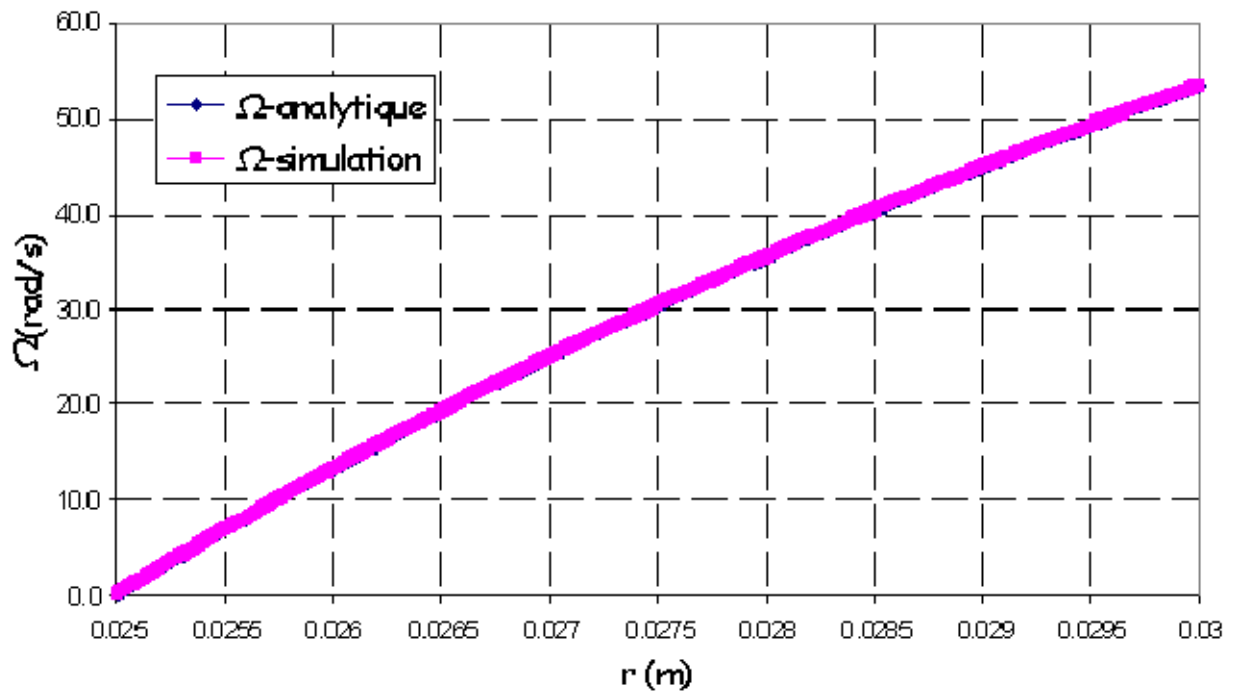


Figure 1: Ecoulement newtonien isotherme stationnaire. En rose, la vitesse de rotation simulée et en bleue la vitesse de rotation analytique. Le rayon du cylindre intérieur, $a=0.025$ m et celui du cylindre extérieur, $b=0.03$ m et $\Omega_e=53$ rad/s.

De la même manière, la solution analytique de l'équation de la chaleur en régime permanent, respectant H1 à H5, est connue:

$$\Theta(r) = \frac{(\Theta_b - \Theta_a)}{\ln\left(\frac{b}{a}\right)} \cdot \ln\left(\frac{r}{a}\right) + \Theta_a$$

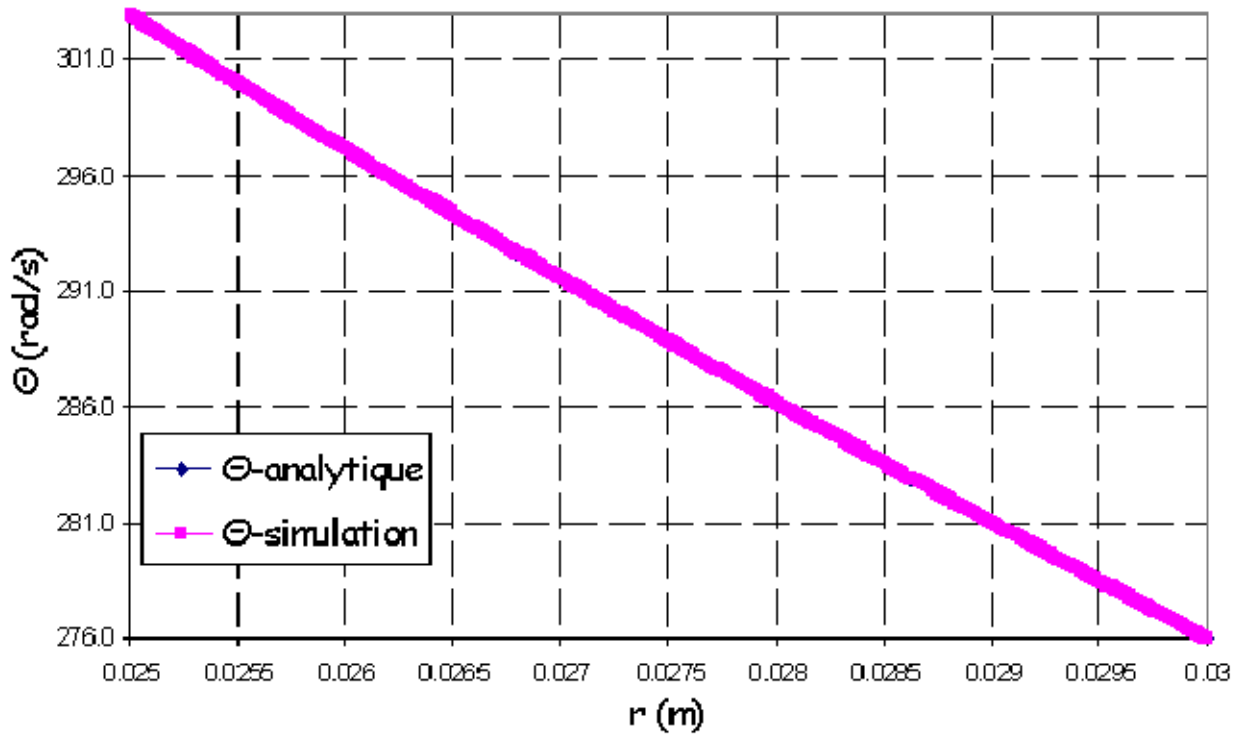


Figure 2: Evolution de la température dans l'entrefer . En rose la température analytique et en bleu la température simulée. $\Theta_a=303$ K, $\Theta_b=296$ K.

La figure 2 représente l'évolution numérique et analytique de la température dans l'entrefer de la géométrie "Couette Cylindrique". Il est clair que ces deux courbes se confondent également.

Vérifions à présent que le code fonctionne correctement pour un écoulement de Bingham:

L'évolution de la contrainte de cisaillement dans l'entrefer, en régime permanent, quelques soient les fluides, respectant les hypothèses H1 à H5, est la suivante :

$$\tau(r) = \frac{\tau_i a^2}{r^2}$$

Faisons quelques analyses sur les différentes situations possibles lors d'un écoulement viscoplastique.

Constatons tout d'abord que la contrainte est maximale à la paroi intérieure, en conséquence si $\tau_y > \tau_i$, le fluide dans notre entrefer est à cisaillement nul. Il se comporte comme un solide.

À contrario, si la contrainte seuil est inférieure à la contrainte de la paroi extérieure, il ne peut pas exister de zone à cisaillement nul dans l'entrefer. Cette condition se traduit par $\frac{\tau_y}{\tau_i} < \frac{a^2}{b^2}$.

Finalement si $\frac{a^2}{b^2} < \frac{\tau_y}{\tau_i} < 1$, il y'a existence d'une zone à cisaillement nul.

Pour un fluide de Bingham, la vitesse analytique dans l'entrefer lorsque le cylindre intérieur est en rotation s'écrit, de manière générale, comme suit:

$$\frac{v}{v_{in}} = \begin{cases} \frac{\tau_i a^2 r}{e \cdot R_0^2} \left(1 - \frac{R_0^2}{r^2} \right) - \frac{Br}{e} \ln \left(\frac{R_0}{r} \right) & a \leq r < R_0 \\ 0 & R_0 \leq r \leq R_2 \end{cases}$$

$$R_0 = \min \{ R_y, R_2 \}$$

$$\text{avec } B = \frac{\tau_y e}{\mu_0 \Omega a} = \frac{\tau_i a^2}{R_0^2}.$$

Supposons que nous respectons la condition $\frac{a^2}{b^2} < \frac{\tau_y}{\tau_i} < 1$, par conséquent, il y a existence d'une zone à cisaillement nul.

Déterminons R_y en appliquant la condition à la paroi intérieure:

$$\frac{v(a)}{v_{in}} = 1 = \frac{\tau_i a^2 a}{e \cdot R_y^2} \left(1 - \frac{R_y^2}{a^2} \right) - \frac{Br}{e} \ln \left(\frac{R_y}{a} \right)$$

$$\text{De plus : } \tau_i = -B \cdot \frac{R_y^2}{a^2}.$$

$$\text{D'ou l'équation suivante : } \underbrace{\left(1 - \frac{R_y^2}{a^2} \right) - \frac{e}{B \cdot a}}_{F_2(R_y)} = \underbrace{\ln \left(\frac{R_y}{a} \right)}_{F_1(R_y)}$$

La détermination de R_y se fait graphiquement. Par exemple pour $\tau_y = 100 \text{ Pa}$, $\mu_0 = 1 \text{ Pa.s}$ et $\Omega_{in} = 10 \text{ rad/s}$, nous relevons sur la figure 3, $R_y = 0.033 \text{ m}$.

En simulant l'écoulement d'un fluide de Bingham avec $\tau_y = 100 \text{ Pa}$, $\mu_0 = 1 \text{ Pa.s}$ et $\Omega_{in} = 10 \text{ rad/s}$, nous obtenons sensiblement une zone bouchon à $R_y = 0.033 \text{ m}$.

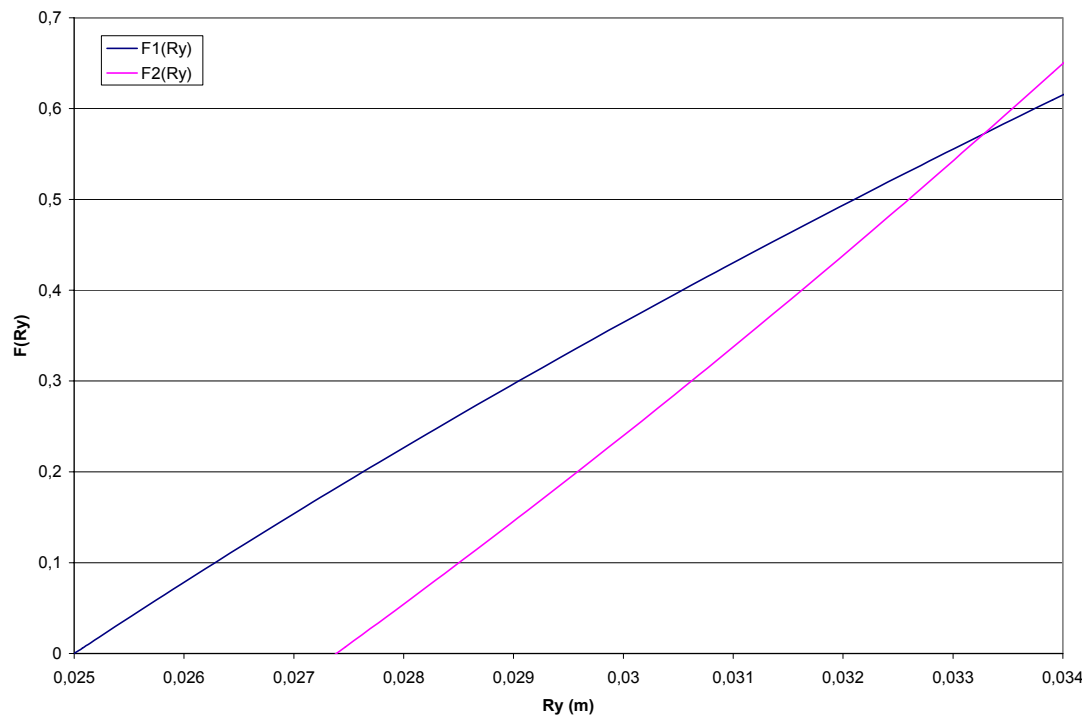


Figure 3: Résolution graphique de l'équation 3-6. Graphiquement $R_y = 0.0333 \text{ m}$.

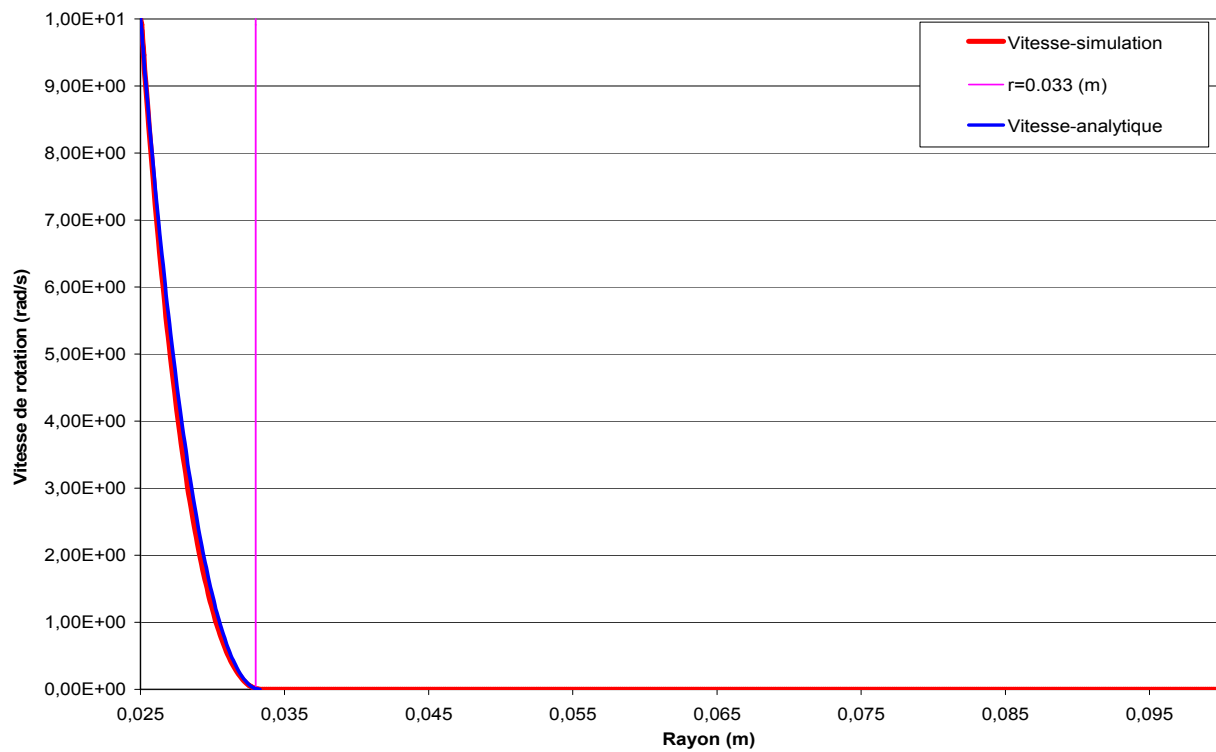


Figure 4: Ecoulement d'un fluide de Bingham avec, $\tau_y=100$ Pa, $\mu=1$ Pa s et $\Omega_{in}=10$ rad/s. Une zone morte apparait à $R_y=0.033$ m. En blue la solution analytique et en rouge la solution numérique.

Ces différents cas tests valident notre code de calcul.